

Optische und magnetooptische Eigenschaften von $U_xLa_{1-x}S$ -Einkristallen und epitaktischen $MnPt_3$ - und $CrPt_3$ -Filmen

Von der Gemeinsamen Naturwissenschaftlichen Fakultät
der Technischen Universität Carolo-Wilhelmina
zu Braunschweig

zur Erlangung des Grades eines
Doktors der Naturwissenschaften
(Dr. rer. nat)

genehmigte

D i s s e r t a t i o n

von Martin Broschwitz

aus Hoya

1. Referent: Prof. Dr. J. Schoenes
 2. Referent: Prof. Dr. J. Hesse
- Eingereicht am: 7. 4. 2003
Mündliche Prüfung am: 18. 6. 2003

Vorabveröffentlichungen der Dissertation

Teilergebnisse aus dieser Arbeit wurden mit der Genehmigung der Gemeinsamen Naturwissenschaftlichen Fakultät, vertreten durch den Mentor der Arbeit, in folgenden Beiträgen vorab veröffentlicht:

Publikationen

- M. Broschwitz, M. Marutzky, J. Schoenes, O. Vogt, K. Mattenberger, *Magnetic and magneto-optical properties of $U_{0.55}La_{0.45}S$* , Phys. Rev. B **66**, 054425 (2002)
- M. Broschwitz, S. Knetsch, A. Borgschulte, L. Bizdoaca, J. Schoenes, *Thickness dependence of the optical and magneto-optical properties of thin $CrPt_3$ films*, J. Appl. Phys. **93**, 2458 (2003)
- M. Broschwitz, J. Schoenes, O. Vogt, K. Mattenberger, *Magnetooptische Untersuchungen an $U_xLa_{1-x}S$ -Einkristallen*, Wiss. Ber. HMFA **16** (1999/2000)

Tagungsbeiträge

- M. Broschwitz, A. Borgschulte, U. Barkow, J. Schoenes, C. Cobet, N. Esser, *Optische und magnetooptische Eigenschaften von epitaktisch hergestellten $MnPt_3$ -Filmen*, Verh. DPG (VI) **34**, 814 (1999)
- A.-M. Carsteanu, M. Broschwitz, A. Borgschulte, D. Menzel, J. Schoenes, *Magneto-optical investigations on epitaxial Cr_xPt_{1-x} films*, Verh. DPG (VI) **35**, 609 (2000)
- D. Menzel, A. Borgschulte, M. Broschwitz, F.-J. Niebur, J. Schoenes, *Large Kerr rotation in the blue spectral range of epitaxial Mn_xPt_{1-x} and Cr_xPt_{1-x} thin films on $SrTiO_3$ substrates*, 18th General Conference of the Condensed Matter Division of the European Physical Society, Montreux (Schweiz) (2000)
- M. Broschwitz, B. Lücke, A.-M. Carsteanu, A. Borgschulte, D. Menzel, J. Schoenes, *Magnetooptische Untersuchungen an epitaktischen $CrPt_3$ -Filmen*, Verh. DPG (VI) **36**, 255 (2001)
- M. Broschwitz, J. Schoenes, O. Vogt, K. Mattenberger, *Magneto-optical properties of $U_{0.3}La_{0.7}S$* , 31. Journées des Actinides, St. Malo (Frankreich) (2001)
- M. Broschwitz, J. Schoenes, M. Marutzky, O. Vogt, K. Mattenberger, *Magneto-optische Eigenschaften an $U_{1-x}La_xS$* , Verh. DPG (VI) **37**, 225 (2002)
- M. Broschwitz, S. Knetsch, A. Borgschulte, L. Bizdoaca, J. Schoenes, *Schicht-dickenabhängigkeit der optischen und magnetooptischen Eigenschaften von epitaktischen $CrPt_3$ -Filmen*, Verh. DPG (VI) **37**, 94 (2002)

- C. Stellmach, M. Rode, M. Broschwitz, U. Barkow, J. Schoenes, *Optische Untersuchungen am $U_xLa_{1-x}S$ -System von 10 meV bis 4 eV*, Verh. DPG (VI) **37**, 286 (2002)
- M. Broschwitz, A.-M. Carsteanu, A. Borgschulte, J. Schoenes, *Optik und Magneto-optik an dünnen $CrPt_3$ -Filmen*, Verh. DPG (VI) **38**, 126 (2003)

Inhaltsverzeichnis

1. <i>Einleitung</i>	7
2. <i>Theoretische Grundlagen</i>	9
2.1 Optische Eigenschaften von Festkörpern	10
2.1.1 Brechungsindex und dielektrische Funktion	10
2.1.2 Dispersionsmodelle	11
2.2 Magnetooptischer Kerr-Effekt	16
2.2.1 Makroskopisches Modell	16
2.2.2 Die magnetooptischen Meßgrößen	18
2.2.3 Mikroskopisches Modell	19
2.2.4 Magnetooptische Linienformen	22
2.3 Grundlagen des Magnetismus	24
2.3.1 Dia- und Paramagnetismus	25
2.3.2 Kollektiver Magnetismus	27
3. <i>Experimentelle Grundlagen und Aufbau</i>	30
3.1 Das Tieftemperatur-Kerrspektrometer in der Hochmagnetfeldanlage	30
3.1.1 90°-Polarisationsmodulation	30
3.1.2 Experimentelle Details	33
3.2 Nullabgleich-Kerrspektrometer	38
3.3 Bestimmung der optischen Eigenschaften mittels Ellipsometrie	42
4. <i>Die untersuchten Materialsysteme</i>	45
4.1 Magnetisch verdünnte Uranchalkogenide	45
4.1.1 Eigenschaften von Uranmonochalkogeniden	45
4.1.2 $U_xLa_{1-x}S$ -Verbindungen	47

4.2	Die Systeme $\text{Mn}_x\text{Pt}_{1-x}$ und $\text{Cr}_x\text{Pt}_{1-x}$	49
4.2.1	Herstellung, strukturelle und magnetische Eigenschaften von $\text{Mn}_x\text{Pt}_{1-x}$ und $\text{Cr}_x\text{Pt}_{1-x}$	50
5.	<i>Magnetismus im System $\text{U}_x\text{La}_{1-x}\text{S}$</i>	54
6.	<i>Magnetooptische Untersuchungen an $\text{U}_x\text{La}_{1-x}\text{S}$</i>	64
6.1	Die binären Verbindungen: US und LaS	64
6.1.1	US	64
6.1.2	LaS	67
6.2	Messungen an $\text{U}_x\text{La}_{1-x}\text{S}$	68
6.2.1	$\text{U}_{0,55}\text{La}_{0,45}\text{S}$	68
6.2.2	$\text{U}_{0,8}\text{La}_{0,2}\text{S}$	74
6.2.3	Verschiebung der Plasmakante von $\text{U}_x\text{La}_{1-x}\text{S}$ durch Oxidation . . .	79
7.	<i>Magnetooptische Untersuchungen an MnPt_3 und CrPt_3</i>	82
7.1	MnPt_3	83
7.1.1	Diskussion des Kerr-Spektrums von MnPt_3	83
7.1.2	Konzentrationsabhängigkeit der magnetooptischen Effekte	88
7.2	CrPt_3	90
7.2.1	Einfluß der Schichtdicke auf den dielektrischen Tensor	91
7.2.2	Chemische Ordnung	102
8.	<i>Zusammenfassung</i>	106

1. Einleitung

Optische Spektroskopie ist seit langer Zeit eine vielfach verwendete Methode, um Einblicke in die elektronische Struktur von Festkörpern zu gewinnen. So lassen sich aus den Spektren des Reflexionsvermögens oder der dielektrischen Funktion Aussagen z. B. über die Ladungsträgerkonzentration oder über die Energie von Interbandübergängen machen. Wenn zusätzlich der Einfluß eines äußeren oder inneren Magnetfeldes auf die optischen Konstanten untersucht wird, spricht man von der *Magnetooptik*. Erstmals entdeckt wurde ein magnetooptischer Effekt im Jahr 1845, als Michael Faraday ein Stück Bleiborsilikatglas einem longitudinalen Magnetfeld aussetzte. Er stellte dabei fest, daß ein linear polarisierter Lichtstrahl nach dem Durchgang durch das Glas seine Polarisationsrichtung geändert hatte und daß sich dieser Effekt auf den Einfluß des Magnetfeldes zurückführen ließ [1]. Die naheliegende Vermutung, daß eine derartige Veränderung der Polarisations-eigenschaften auch nach der Reflexion an einem Körper im Magnetfeld auftritt, konnte erst etwa 30 Jahre später bestätigt werden [2]. Diese Erscheinung wurde nach seinem Entdecker *magnetooptischer Kerr-Effekt* genannt.

In der heutigen Zeit gibt es unterschiedliche Anwendungen des magnetooptischen Kerr-Effekts: Die Proportionalität des Drehwinkels zur Magnetisierung der Probe ermöglicht eine *in situ* durchführbare, schnelle Bestimmung der magnetischen Eigenschaften von dünnen Filmen während des Probenwachstums. Zum anderen kann man, ähnlich wie in der magnetfeldfreien Optik, Strukturen im spektralen Verlauf der magnetooptischen Meßgrößen zur Interpretation der Bandstruktur des Materials heranziehen. Die Kombination von Optik und Magnetooptik liefert dabei eine ganze Reihe großer Vorteile. So können elektronische Übergänge dahingehend voneinander separiert werden, ob sie spinpolarisierte Bänder einschließen oder nicht. Auch der Grad der Spinpolarisation der Bänder wie auch der Leitungselektronen kann anhand der Größe des magnetooptischen Effekts abgeschätzt werden.

In der Technik hat der Kerr-Effekt eine Anwendung in der magnetooptischen Datenspeicherung gefunden. Auch wenn die magnetischen Datenspeicher aufgrund ihrer geringen Herstellungskosten nach wie vor weitgehend den Markt beherrschen, sind die Vorteile der magnetooptischen Speichertechnologie nicht zu übersehen. Magnetooptische Datenspeicher vereinigen in sich die beiden Hauptvorteile der optischen und der magnetischen Datenspeicherung, die hohe Speicherdichte sowie die nahezu unbegrenzte Wiederbeschreibbarkeit. Darüber hinaus sind sie aufgrund des verhältnismäßig großen Abstandes zwischen Lesekopf und Platte deutlich robuster als die magnetischen Festplatten und sind daher besonders für die Langzeitarchivierung geeignet.

In dieser Arbeit werden mehrere Teilgebiete der Magnetooptik behandelt. Zum einen war es die Aufgabe, das Materialsystem $U_xLa_{1-x}S$ bei unterschiedlichen Urananteilen zu untersuchen. Das Interesse bei dieser pseudobinären Verbindung liegt darin begründet, daß der Grad der Lokalisierung der $5f$ -Elektronen, die die magnetischen Eigenschaften dieses Materials bestimmen, mit der Urankonzentration x variiert. Im Fall des reinen Uransulfid zeigen sie einen eher itineranten Charakter. Die teilweise Substitution des Urans mit einem unmagnetischen Ion größerer Ausdehnung bewirkt sowohl eine Verringerung der Zahl benachbarter Uranatome als auch eine erhöhte Gitterkonstante. Beide Effekte sollten nun zu einem stärker lokalisierten Verhalten der f -Elektronen führen. Analog zu ähnlichen Entdeckungen an anderen Uranchalkogeniden erwartet man auch beim $U_xLa_{1-x}S$ eine Veränderung der magnetooptischen Eigenschaften, die wiederum Rückschlüsse auf die elektronischen Eigenschaften dieses Systems ermöglicht.

Während der soeben dargestellte Teil der Arbeit eher vom Standpunkt der Grundlagenforschung aus interessant ist, kommen als mögliche Kandidaten für die magnetooptische Datenspeicherung verschiedenartige Seltenerd- bzw. Übergangsmetallverbindungen in Betracht. Anschließend an vorhergehende Arbeiten in unserer Arbeitsgruppe, wurde hier der Schwerpunkt auf die Legierungen $MnPt_3$ sowie $CrPt_3$ gelegt. Die optischen und magnetooptischen Eigenschaften dieser Stoffe sind bereits seit längerer Zeit Gegenstand intensiver wissenschaftlicher Studien. Daher gilt hier das Hauptaugenmerk den Einflüssen verschiedener Herstellungsparameter von dünnen, epitaktisch hergestellten XPt_3 -Filmen auf den magnetooptischen Kerr-Effekt sowie die optischen Konstanten. Das Ziel der Untersuchungen ist eine Optimierung der Schichtparameter in Bezug auf die *figure of merit*, d. h. großer Kerr-Effekt bei gleichzeitig hohem Reflexionsvermögen, einer für die Eignung als magnetooptisches Speichermedium entscheidenden Größe. Diese bestimmt direkt das Signal-Rausch-Verhältnis des Speichermaterials.

Im nächsten Kapitel wird eine kurze Übersicht über die theoretischen Grundlagen der Festkörperoptik und -magnetooptik, mit Schwerpunkt auf den verschiedenen Dispersionsmodellen, gegeben. Zusätzlich wird kurz auf die fundamentalen magnetischen Eigenschaften von Stoffen, den Dia- Para- und Ferromagnetismus, eingegangen. Kapitel 3 befaßt sich zunächst mit der Erläuterung der verwendeten Meßverfahren. Zum anderen wird eine Beschreibung der Spektrometer, die zum Teil eigens für diese Arbeit aufgebaut wurden, geliefert. In Kapitel 4 werden die untersuchten Materialsysteme zusammen mit einer kurzen Übersicht über ihre allgemeinen Eigenschaften vorgestellt. Die drei letzten Kapitel beschäftigen sich mit den Messungen sowie der dazugehörigen Diskussion. Während in Kapitel 5 auf die magnetischen Eigenschaften von $U_xLa_{1-x}S$ eingegangen wird, wird die optische und magnetooptische Charakterisierung dieser Proben im darauffolgenden Abschnitt dargestellt. Die Untersuchungen an den Übergangsmetall-Verbindungen $MnPt_3$ und $CrPt_3$ in Kapitel 7 schließen die vorliegende Arbeit ab.

2. Theoretische Grundlagen

In dieser Arbeit wurden die optischen und magnetooptischen Eigenschaften von verschiedenen Festkörpern untersucht. Die Optik befaßt sich allgemein mit der Wechselwirkung zwischen elektromagnetischer Strahlung und dem Material, wobei man unter dem „optischen“ Bereich Photonenenergien zwischen ca. 1 meV und 100 eV bzw. Lichtwellenlängen von 10 nm bis 1 mm versteht. In der vorliegenden Arbeit beschränken wir uns hauptsächlich auf den sichtbaren sowie den nahen infraroten bzw. ultravioletten Spektralbereich ($1 \text{ eV} < E_{\text{Photon}} < 4,5 \text{ eV}$).

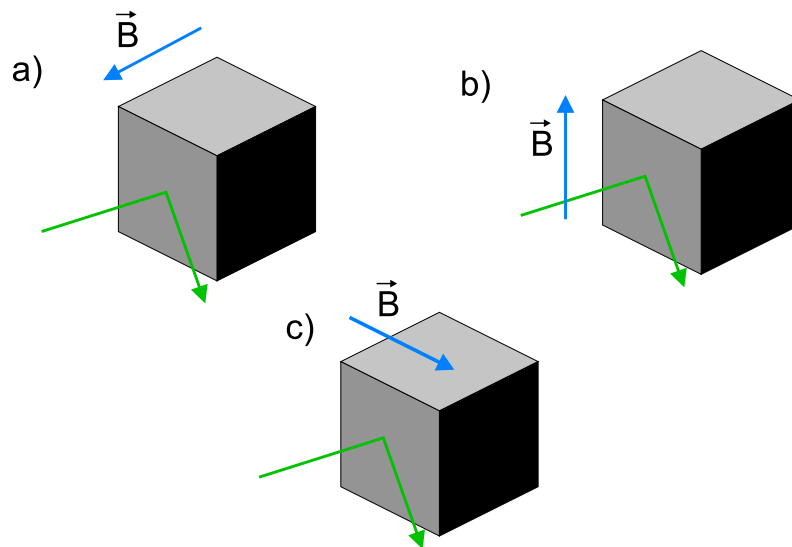


Abb. 2.1: Verschiedene geometrische Anordnungen zur Messung der magnetooptischen Kerr-Effekte. (a) zeigt die in der vorliegenden Arbeit verwendete polare Geometrie, bei der das äußere Magnetfeld H senkrecht zur Probenoberfläche steht. Ist das Feld dagegen parallel zur Oberfläche angelegt, unterscheidet man zwischen dem transversalen Kerr-Effekt, bei dem $H \perp$ zur Einfallsebene steht (b) und dem longitudinalen Kerr-Effekt mit $H \parallel$ zur Einfallsebene (c).

Die Magnetooptik dagegen beschreibt nun speziell die Änderung der optischen Eigenschaften durch die *Magnetisierung* des Körpers. Hierbei treten verschiedene Effekte auf,

die u. a. von der Richtung der Magnetisierung der Probe abhängen. Von den vielfältigen magnetooptischen Effekten kam der *polare magnetooptische Kerr-Effekt* zum Einsatz, der die Änderung der Polarisations-eigenschaften des Lichts nach der Reflexion am magnetisierten Material beschreibt und bei dem das äußere Feld senkrecht zur Probenoberfläche liegt (siehe Abb. 2.1).

Das folgende Kapitel gibt eine kurze Einführung in die Festkörperoptik und die Magnetooptik, wobei insbesondere auf die beiden im untersuchten Spektralbereich wichtigsten Absorptionsmechanismen, die Interbandanregung sowie den Einfluß freier Leitungselektronen, eingegangen wird. Zum Abschluß folgt eine kurze Übersicht über die Grundlagen des Magnetismus.

2.1 Optische Eigenschaften von Festkörpern

2.1.1 Brechungsindex und dielektrische Funktion

Die makroskopischen optischen Eigenschaften eines Materials werden durch zwei Größen beschrieben: den *Brechungsindex* n , der das Verhältnis der Lichtgeschwindigkeit im Vakuum zu der im Medium angibt, sowie den *Extinktionskoeffizienten* k , der ein Maß für die Absorption der Lichtwelle ist.

Beide Größen können in dem *komplexen* Brechungsindex zusammengefaßt werden:

$$\tilde{n} = n - ik. \quad (2.1)$$

Direkt mit dem komplexen Brechungsindex verknüpft ist die *dielektrische Funktion* (DK¹), und zwar über die Maxwellsche Relation [4]²:

$$\tilde{\epsilon} = \epsilon_1 - i\epsilon_2 = \tilde{n}^2. \quad (2.2)$$

Die dielektrische Funktion gibt Auskunft über den Zusammenhang zwischen dielektrischer Verschiebung \vec{D} und dem mikroskopischen elektrischen Feld \vec{E} . Diese ist durch die folgende Materialgleichung gegeben:

$$\vec{D} = \epsilon_0 \tilde{\epsilon} \vec{E} \quad (2.3)$$

mit der elektrischen Feldkonstante ϵ_0 . Von einer skalaren dielektrischen Funktion kann man nur sprechen, wenn das zu untersuchende Material isotrop ist. Im allgemeinsten Fall sind \vec{D} und \vec{E} jedoch über einen Tensor miteinander verknüpft:

$$\vec{D} = \hat{\epsilon} \vec{E} = \begin{pmatrix} \tilde{\epsilon}_{xx} & \tilde{\epsilon}_{xy} & \tilde{\epsilon}_{xz} \\ \tilde{\epsilon}_{yx} & \tilde{\epsilon}_{yy} & \tilde{\epsilon}_{yz} \\ \tilde{\epsilon}_{zx} & \tilde{\epsilon}_{zy} & \tilde{\epsilon}_{zz} \end{pmatrix} \vec{E}. \quad (2.4)$$

¹ Die Abkürzung steht eigentlich für die (statische) Dielektrizitätskonstante, hat sich aber auch für die (spektrale) dielektrische Funktion eingebürgert.

² Streng genommen gilt $\tilde{n}^2 = \mu_r \tilde{\epsilon}$ mit μ_r als der magnetischen Permeabilität. Diese kann aber, da die ferro- bzw. paramagnetischen Resonanzen bei Frequenzen im GHz-Bereich liegen, im optischen Frequenzbereich gleich 1 gesetzt werden.

Durch geeignete Wahl des Koordinatensystems ist dieser Tensor diagonalisierbar, so daß für ein anisotropes Material drei verschiedene Diagonalelemente vorhanden sind. Bei uniaxialer Anisotropie gilt $\tilde{\varepsilon}_{xx} = \tilde{\varepsilon}_{yy} \neq \tilde{\varepsilon}_{zz}$, während es bei einem isotropen Material nur noch ein Diagonalelement gibt ($\tilde{\varepsilon}_{xx} = \tilde{\varepsilon}_{yy} = \tilde{\varepsilon}_{zz}$). Im letzten Fall kann demnach der Tensor der DK auch durch eine skalare Größe ersetzt werden.

Die komplexe dielektrische Funktion und damit auch Brechungs- und Extinktionskoeffizient hängen von der Wellenlänge λ der eingestrahlten Lichtwelle bzw. der Photonenenergie $\hbar\omega$ (ω : Kreisfrequenz des eingestrahlten Lichts) ab. Die Kenntnis der spektralen optischen Eigenschaften ermöglicht Aussagen z. B. über die elektronische Struktur eines Festkörpers sowie über Materialeigenschaften wie die Ladungsträgerkonzentration oder die effektive Masse der Träger.

Da sowohl Absorption als auch Brechung ihren Ursprung in demselben physikalischen Vorgang haben, nämlich der Anregung des Materials durch eine elektromagnetische Welle, lassen sich Real- und Imaginärteil der DK über die *Kramers-Kronig*-Relationen [3] ineinander überführen:

$$\varepsilon_1(\omega) - 1 = \frac{2}{\pi} P \int_0^\infty \frac{\omega' \varepsilon_2(\omega')}{\omega'^2 - \omega^2} d\omega', \quad (2.5)$$

$$\varepsilon_2(\omega) = -\frac{2\omega}{\pi} P \int_0^\infty \frac{\varepsilon_1(\omega')}{\omega'^2 - \omega^2} d\omega'. \quad (2.6)$$

P bezeichnet hier den Cauchyschen Hauptwert des Integrals. Der Kramers-Kronig-Zusammenhang gilt prinzipiell auch für andere Paare optischer Größen, so z. B. n und k oder Reflektivität R und Phasenwinkel δ . Somit ließe sich über diese Integralbeziehungen eine optische Größe aus der anderen berechnen. Hierfür muß aber streng genommen die Ausgangsgröße über den gesamten Spektralbereich bekannt sein. In der Praxis hilft man sich etwa bei der Kramers-Kronig-Analyse von Reflexionsspektren mit der Extrapolation der gemessenen Daten hin zu Photonenenergien $\rightarrow 0$ bzw. $\rightarrow \infty$ unter Zuhilfenahme bestehender Modellfunktionen (siehe z. B. [5]).

Es ist aber auch möglich, z. B. durch Ellipsometrie (siehe Kap. 3.3) simultan Real- und Imaginärteil der DK zu bestimmen. Dieses Verfahren ist vom Prinzip her schon seit dem 19. Jahrhundert bekannt [6], auf Grund des großen Rechenaufwands hat sich die spektroskopische Ellipsometrie aber erst in den letzten 30 Jahren zu einer Standardmeßmethode entwickelt. Auf eine Kramers-Kronig-Rechnung kann dann prinzipiell verzichtet werden, ist zur Überprüfung der gemessenen Spektren jedoch dennoch sinnvoll.

2.1.2 Dispersionsmodelle

Die Absorption von Licht in einem Festkörper kann verschiedene Ursachen haben, wobei im untersuchten Spektralbereich im wesentlichen Effekte freier Elektronen und Interbandübergänge eine Rolle spielen. Abb. 2.2 gibt eine kurze Übersicht über die möglichen Absorptionsmechanismen.

Ausgangspunkt zur Beschreibung der Frequenzabhängigkeit der optischen Eigenschaften ist die klassische Bewegungsgleichung für ein Elektron in einem äußeren periodischen

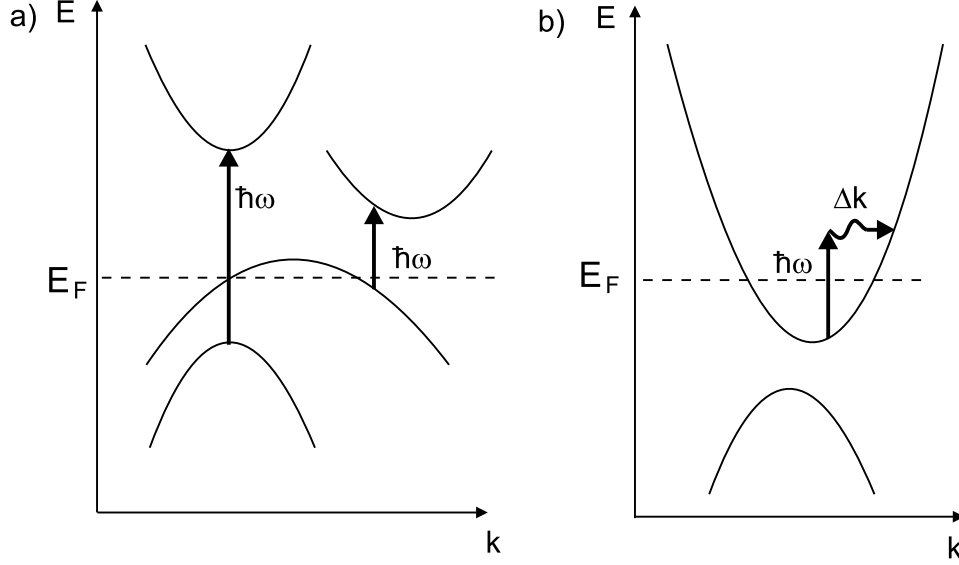


Abb. 2.2: (a): Schematische Darstellung eines Interbandübergangs mit der Photonenenergie $\hbar\omega$, d. h. einer Anregung eines Elektrons vom Valenz- ins Leitungsband. Anfangs- bzw. Endzustand können in vollständig besetzten bzw. vollständig unbesetzten Bändern liegen (links), oder eines der Bänder kann teilweise besetzt sein (rechts). (b): Intra-bandanregung freier Elektronen. Aufgrund des Impulserhaltungssatzes sind derartige Übergänge nur möglich, wenn die Differenz Δk zwischen Photonen- und Elektronenimpuls z. B. von einem Phonon geliefert wird.

elektrischen Feld der Lichtwelle $E_0 e^{i\omega t}$:

$$m^* \frac{d^2 x}{dt^2} + m^* \gamma \frac{dx}{dt} + Fx = eE_0 e^{i\omega t}. \quad (2.7)$$

In diesem *Lorentz-Modell* wird davon ausgegangen, daß die Festkörperelektronen nach dem Hooke-Gesetz über Federkräfte F an die Atomrümpfe gebunden sind [4]. e ist die Elementarladung, der Ausdruck m^* beschreibt die *effektive Masse* der Ladungsträger, die gegeben ist durch die Krümmung der Bänder im k -Raum und die ganz erheblich von der Ruhemasse m_0 des Elektrons abweichen kann. γ ist eine Konstante, die ein Maß für die Dämpfung der Lichtwelle darstellt (vgl. Gl. 2.11). Die Auslenkung x der Elektronen ergibt sich dann aus der Lösung dieser Differentialgleichung zu:

$$x = \frac{eE_0 e^{i\omega t}}{m^*(\omega_0^2 - \omega^2 + i\omega\gamma)}, \quad (2.8)$$

mit der *Resonanzfrequenz* $\omega_0 = \sqrt{F/m^*}$. Den Zusammenhang zwischen der dielektrischen Funktion $\tilde{\epsilon}$ und x bekommt man über die *totale Polarisierbarkeit* α :

$$\tilde{\epsilon} = 1 + \frac{\alpha}{\epsilon_0} = 1 + \frac{Nex}{\epsilon_0 E}. \quad (2.9)$$

N ist die Konzentration der Ladungsträger pro Volumeneinheit. Die Frequenzabhängigkeit von Real- und Imaginärteil der dielektrischen Funktion ergibt sich damit zu:

$$\varepsilon_1 = 1 + \frac{Ne^2(\omega_0^2 - \omega^2)}{\varepsilon_0 m^* ((\omega_0^2 - \omega^2)^2 + \omega^2 \gamma^2)}, \quad (2.10)$$

$$\varepsilon_2 = \frac{Ne^2 \omega \gamma}{\varepsilon_0 m^* ((\omega_0^2 - \omega^2)^2 + \omega^2 \gamma^2)}. \quad (2.11)$$

Die dielektrische Funktion im Bereich einer Resonanzstelle ist dargestellt in Abb. 2.3. Der absorptive Teil der DK, d. h. der Imaginärteil ε_2 erreicht in der Nähe der Resonanzfrequenz sein Maximum, während ε_1 dort den Wert 1 aufweist. In der Nähe des Absorptionsmaximums besitzt das ε_1 ebenso wie der Brechungsindex n eine negative Steigung über der Energie. Diesen Bereich bezeichnet man als denjenigen der *anormalen Dispersion*, während dort, wo die Absorption gering ist, *normale Dispersion*, d. h. eine Zunahme des Brechungsindex wie auch von ε_1 mit der Photonenenergie vorliegt. Hierzu sei angemerkt, daß das Lorentzmodell nicht nur eine Beschreibung der Absorption durch Interbandübergänge darstellt, sondern auch für andere Arten der Anregung von Festkörperelektronen, wie z. B. durch Phononen.

Setzt sich ein optisches Spektrum aus mehreren Strukturen zusammen, die durch j Lorentzoszillatoren beschrieben werden können, modifiziert sich die Frequenzabhängigkeit der komplexen DK zu:

$$\tilde{\varepsilon} = 1 + \sum_j f_j \frac{Ne^2}{\varepsilon_0 m^* (\omega_{0j}^2 - \omega^2 + i\omega\gamma_j)}. \quad (2.12)$$

f_j ist die *Oszillatorstärke* des Oszillators j . Diese ergibt sich aus der quantenmechanischen Behandlung der Dispersionstheorie und ist proportional zum Quadrat des Übergangsmatrixelements.

Der Einfluß freier Elektronen macht sich hauptsächlich im Infrarotbereich bemerkbar und kann durch das *Drude-Zener-Modell* beschrieben werden: Hierbei wird einfach in der Bewegungsgleichung (Gl. 2.7) die Rückstellkraft F weggelassen. Als Lösung bekommt man für die Frequenzabhängigkeit der dielektrischen Funktion folglich dieselben Terme wie bei den Gleichungen 2.10, 2.11 für den Fall $\omega_0 = 0$. Die Ausdrücke vereinfachen sich dann zu:

$$\varepsilon_1 = -\frac{Ne^2}{\varepsilon_0 m^* (\gamma^2 + \omega^2)}, \quad (2.13)$$

$$\varepsilon_2 = \frac{Ne^2 \gamma}{\varepsilon_0 m^* \omega (\gamma^2 + \omega^2)}. \quad (2.14)$$

Den Verlauf der dielektrischen Funktion eines Metalls nach dem Drude-Zener-Modell zeigt Abb. 2.4.

ε_2 divergiert in diesem Fall für $\omega \rightarrow 0$, während ε_1 bei $\omega = 0$ einen (in der Regel negativen) endlichen Wert annimmt. Um die Divergenz des ε_2 zu unterdrücken, wird bei Metallen das optische Verhalten oft auch durch die *komplexe optische Leitfähigkeit* ausgedrückt:

$$\tilde{\sigma}(\omega) = i\omega\varepsilon_0\tilde{\varepsilon}(\omega), \quad (2.15)$$

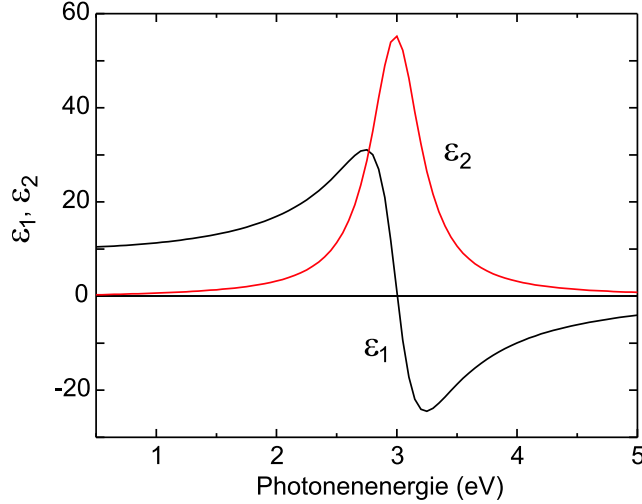


Abb. 2.3: Verlauf der dielektrischen Funktion in der Nähe einer Absorptionsstelle nach dem Lorentz-Modell. Gewählte Parameter: $\hbar\omega_0 = 3$ eV, $\hbar\gamma = 0,5$ eV, $m^* = m_0$. Die Annahme eines geringeren Wertes für γ würde zu einem höheren Maximalwert des ε_2 und zu einer geringeren Breite der Struktur führen.

wobei zu beachten ist, daß die Absorption hier im Gegensatz zur dielektrischen Funktion durch den Realteil von $\tilde{\sigma}$ gegeben ist und sich für $\omega \rightarrow 0$ dem Wert der Gleichstromleitfähigkeit σ_0 annähert.

Der Einfluß der freien Ladungsträger zeigt sich auch in dem spektralen Verlauf des Reflexionsgrads. Die Reflektivität R bei senkrechter Inzidenz wird aus den optischen Konstanten wie folgt berechnet:

$$R = \frac{(n-1)^2 + k^2}{(n+1)^2 + k^2}, \quad (2.16)$$

wobei sich n und k aus $\tilde{\varepsilon}$ mit Hilfe von Gl. 2.1 und Gl. 2.2 berechnen lassen:

$$n = \sqrt{0,5 \cdot (\sqrt{\varepsilon_1^2 + \varepsilon_2^2} + \varepsilon_1)}, \quad (2.17)$$

$$k = \sqrt{0,5 \cdot (\sqrt{\varepsilon_1^2 + \varepsilon_2^2} - \varepsilon_1)}. \quad (2.18)$$

Wenn, wie in einem Metall, der Extinktionskoeffizient im infraroten und z. T. auch im sichtbaren Spektralbereich hohe Werte hat, folgt damit, daß die Reflektivität dort auf Werte nahe 1 ansteigt.

Zum anderen bewirken die freien Ladungsträger aber auch, daß bei höheren Frequenzen eine starke Struktur im Reflexionsspektrum erscheinen kann: In der Nähe der sog. *Plasmafrequenz* tritt mitunter ein ausgeprägtes Minimum der Reflektivität auf. Die Plas-

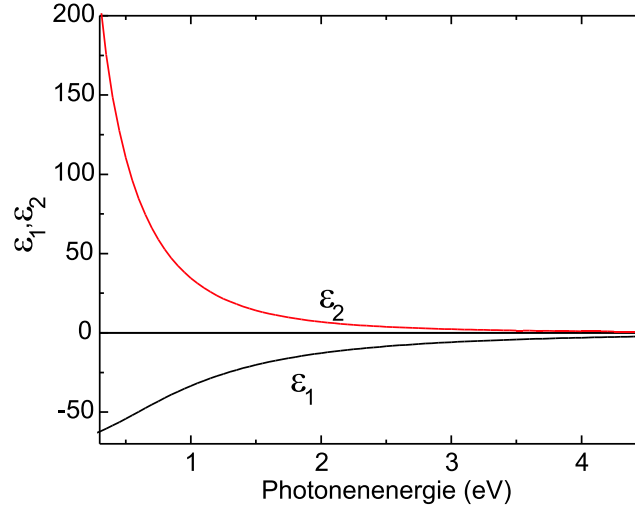


Abb. 2.4: Verlauf der dielektrischen Funktion im Bereich der Absorption der freien Elektronen nach dem Drude-Zener-Modell. Gewählte Parameter: $N = 5 \cdot 10^{28} \text{ m}^{-3}$, $\hbar\gamma = 1 \text{ eV}$.

mafrequenz ist gegeben durch:

$$\omega_p = \sqrt{\frac{Ne^2}{\varepsilon_0 m^*}}. \quad (2.19)$$

Dies ergibt sich daraus, daß dort, wo die optischen Konstanten sehr kleine Werte annehmen, der Realteil der dielektrischen Funktion den Wert 1 annimmt³. Typische Reflexionsspektren für ein Metall nach dem Drude-Zener-Modell sind in Abb. 2.5 dargestellt. Die gewählten Parameter sind: $N = 6 \cdot 10^{27} \text{ m}^{-3}$ und $m^* = m_0$, woraus die Plasmaenergie $E_p = \hbar\omega_p$ zu 2,90 eV folgt.

Die Plasmafrequenz bestimmt die Energie, bei der ein deutlicher Abfall der Reflektivität einsetzt, wie in Abb. 2.5 zu sehen ist. Sind dagegen bei höheren Frequenzen noch Interbandübergänge vorhanden, was in der Lösung der Bewegungsgleichung phänomenologisch durch ein $\varepsilon_{opt} > 1$ anstelle der 1 im Realteil von $\tilde{\varepsilon}$ beschrieben werden kann, durchläuft die Reflektivität ein Minimum. Die abfallende Flanke des Reflektivitätsspektrums ist zu niedrigeren Energien hin verschoben und man spricht von einem *abgeschirmten Plasmon* mit der Energie $\hbar\omega_p^* = \frac{\hbar\omega_p}{\sqrt{\varepsilon_{opt}}}$. Als Plasmon bezeichnet man eine longitudinale Anregung des freien Elektronengases bei der Plasmafrequenz. Dieses läßt sich anhand von Energieverlustmessungen hochenergetischer Elektronen nachweisen (siehe dazu z. B. [7]).

Diese Betrachtungen für den Einfluß freier Ladungsträger auf die Frequenzabhängigkeit der Reflektivität gelten allerdings nur, falls im Bereich der abgeschirmten Plasmaenergie keine Interbandanregungen möglich sind. Diese führen dort zu hohen Reflektivitätswerten,

³ Dies gilt natürlich nicht für den Fall $\varepsilon_1 = 1$ in der Nähe einer Absorptionsbande (s. o.), da dort ε_2 einen großen Wert besitzt.

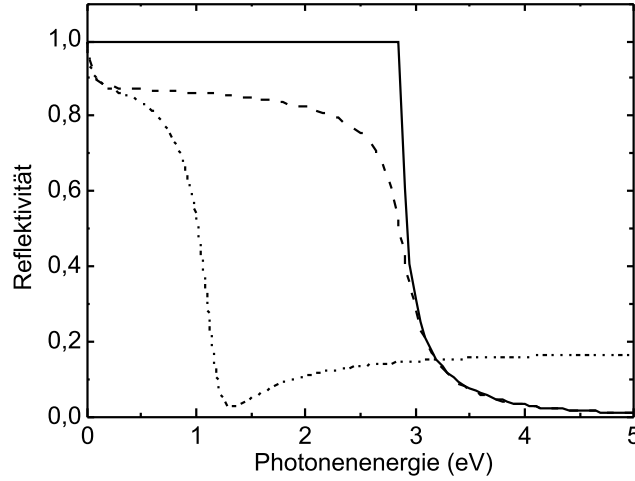


Abb. 2.5: Reflektivitätsspektrum eines Metalls nach dem Drude-Zener-Modell und ohne Interbandübergänge im Spektralbereich bis 5 eV (durchgezogene Linie: ohne Dämpfung; gestrichelte Linie: mit Dämpfung ($\hbar\gamma = 0,2$ eV); gepunktete Linie: mit Dämpfung ($\hbar\gamma = 0,2$ eV) und $\varepsilon_{opt}=5$).

so daß das scharfe Minimum häufig nicht zu beobachten ist.

2.2 Magnetooptischer Kerr-Effekt

2.2.1 Makroskopisches Modell

Die magnetooptischen Effekte sind das Ergebnis der Wechselwirkung von elektromagnetischer Strahlung mit magnetisierter Materie. Das Magnetfeld induziert durch die Lorentzkraft auf die Kristallelektronen eine Anisotropie in das Material. Die Bewegungsgleichung für das Elektron muß dann durch einen zusätzlichen Term ergänzt werden und hat für den Fall polarer Geometrie die Form:

$$\frac{d^2\vec{r}}{dt^2} + \gamma \frac{d\vec{r}}{dt} + \omega_0^2 \vec{r} = \frac{e}{m^*} \vec{E} e^{i\omega t} + \frac{e}{m^*} \frac{d\vec{r}}{dt} \times \vec{B}. \quad (2.20)$$

Wenn nun das Koordinatensystem so gewählt wird, daß die z -Achse der Ausbreitungsrichtung entspricht, dann läßt sich dieses Differentialgleichungssystem folgendermaßen in Komponenten aufspalten:

$$\frac{d^2x}{dt^2} + \gamma \frac{dx}{dt} + \omega_0^2 x = \frac{e}{m^*} E_x e^{i\omega t} + \frac{eB}{m^*} \frac{dy}{dt}, \quad (2.21)$$

$$\frac{d^2 y}{dt^2} + \gamma \frac{dy}{dt} + \omega_0 y = \frac{e}{m^*} E_y e^{i\omega t} - \frac{eB}{m^*} \frac{dx}{dt}, \quad (2.22)$$

$$\frac{d^2 z}{dt^2} + \gamma \frac{dz}{dt} + \omega_0 z = 0. \quad (2.23)$$

Das heißt, man bekommt ein System von in den x - und y -Komponenten gekoppelten Differentialgleichungen. Vereinfacht kann die Lösung dieser Differentialgleichung dadurch werden, daß man von der kartesischen zur zirkularen Basis übergeht. Ein Lösungsansatz ist dann durch folgende Beziehung gegeben [8]:

$$\vec{r}_{\pm} = \frac{1}{\sqrt{2}} \frac{e}{m^*(\omega_0^2 - \omega^2 \pm \omega\omega_c + i\omega\gamma)} E_0 e^{i\omega t} \begin{pmatrix} 1 \\ \pm i \end{pmatrix}, \quad (2.24)$$

mit der Zyklotronfrequenz $\omega_c = eB/m$, wobei \vec{r}_{\pm} die Ausbreitung einer rechts-(+) und links-(-) zirkularen Welle angibt. Die Lösung dieses Gleichungssystems führt auf unterschiedliche dielektrische Funktionen für links- und rechtszirkular polarisiertes Licht. Ihre Frequenzabhängigkeit läßt sich darstellen als:

$$\tilde{\varepsilon}_{\pm}(\omega) = 1 + \frac{Ne^2}{\varepsilon_0 m^*} \frac{1}{\omega_0^2 - \omega^2 \pm \omega\omega_c + i\gamma\omega}. \quad (2.25)$$

Analog bekommt man verschiedene optische Konstanten für die beiden Polarisationszustände:

$$\tilde{n}_{\pm}(\omega) = \sqrt{\tilde{\varepsilon}_{\pm}(\omega)}. \quad (2.26)$$

Die Resonanzfrequenz hat sich also durch das Anlegen eines Magnetfeldes verschoben, und zwar um Hälfte der Zyklotronfrequenz ω_c .

Die vom Magnetfeld verursachte Anisotropie hat somit zur Folge, daß die DK auch für isotrope Materialien nicht mehr als Skalar dargestellt werden kann, sondern daß man auf die Tensorschreibweise zurückkommen muß (siehe Kap. 2.1). In der Basis links- und rechtszirkular polarisierter Wellen bekommt man einen diagonalen Dielektrizitätstensor:

$$\vec{\vec{\varepsilon}}_{\pm} = \begin{pmatrix} \tilde{\varepsilon}_{+} & 0 & 0 \\ 0 & \tilde{\varepsilon}_{-} & 0 \\ 0 & 0 & \tilde{\varepsilon}_{zz} \end{pmatrix}. \quad (2.27)$$

Geht man nun zurück zu einem kartesischen Basis-Koordinatensystem, dann erhält man anstelle des Ausdrucks 2.27 durch die Kopplung von x - und y -Komponente der Differentialgleichungen 2.21 folgenden Tensor:

$$\vec{\vec{\varepsilon}}_{kart} = \begin{pmatrix} \tilde{\varepsilon}_{xx} & \tilde{\varepsilon}_{xy} & 0 \\ -\tilde{\varepsilon}_{xy} & \tilde{\varepsilon}_{xx} & 0 \\ 0 & 0 & \tilde{\varepsilon}_{zz} \end{pmatrix}. \quad (2.28)$$

Hierbei ist

$$\tilde{\varepsilon}_{\pm} = \tilde{\varepsilon}_{xx} \pm i\tilde{\varepsilon}_{xy}. \quad (2.29)$$

Zu dem *Diagonalelement* $\tilde{\varepsilon}_{xx}$ (für $\omega_c \ll \omega$, γ ist $\tilde{\varepsilon}_{xx} \approx \tilde{\varepsilon}_{zz}$), das die optischen Eigenschaften des Materials beschreibt, kommt nun das *Nichtdiagonalelement* $\tilde{\varepsilon}_{xy}$ hinzu, durch das die magnetooptische Aktivität gegeben ist.

2.2.2 Die magnetooptischen Meßgrößen

Bei magnetooptischen Experimenten wird die Änderung des Polarisationszustandes einer linear polarisierten Lichtwelle durch den Einfluß eines magnetisierten Materials gemessen. Wird das Material dabei durchstrahlt, so spricht man vom *Faraday-Effekt*. Dieses Verfahren ist nur anwendbar, falls ein hinreichender Anteil des Lichts hindurchgelassen wird, so z. B. bei Isolatoren bzw. bei sehr dünnen metallischen Schichten mit einer Dicke von einigen 100 nm). Da in der vorliegenden Arbeit unter anderem aber metallische *bulk*-Proben untersucht wurden, kam dagegen die Messung des *magnetooptischen Kerr-Effektes* zum Einsatz, bei dem die Polarisationsseigenschaften des von der magnetisierten Probe reflektierten Lichtes untersucht werden.

Im allgemeinsten Fall ist linear polarisiertes Licht nach der Reflexion an der Probe elliptisch polarisiert. Man definiert die Drehung der großen Halbachse der Polarisationsellipse des reflektierten Lichts gegenüber der Richtung der einfallenden Polarisation als *Kerr-Rotation* Θ_K , den Tangens des Längenverhältnisses der kleinen zur großen Halbachse als *Kerr-Elliptizität* η_K (siehe Abb. 2.6). Dieses sind die beiden experimentell zugänglichen Größen.

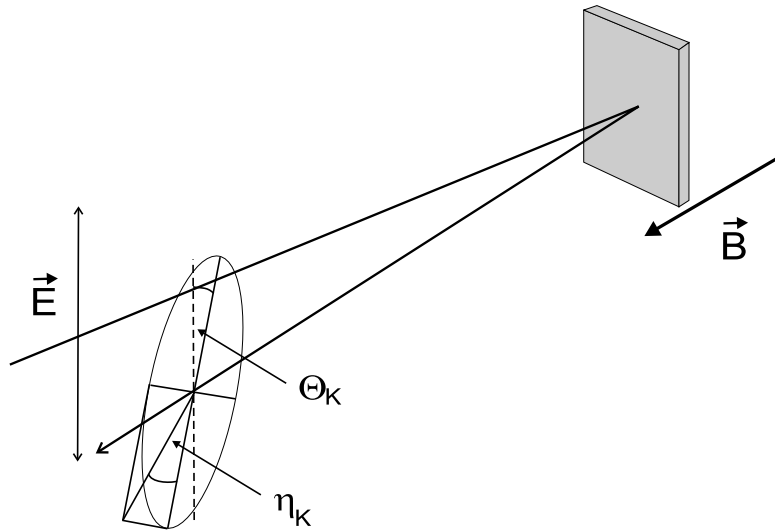


Abb. 2.6: Skizze zur Definition der Meßgrößen beim magnetooptischen Kerr-Effekt. Die Geometrie ist polar, d. h. das äußere Magnetfeld steht senkrecht zur Probenoberfläche.

Wenn man nun den Zusammenhang zwischen den optischen und magnetooptischen Meßgrößen und den Nichtdiagonalelementen des Tensors der DK herstellen will, muß man den Weg über die Reflexionskoeffizienten für rechts- und linkszirkular polarisiertes Licht

gehen. Die Reflexionskoeffizienten $\tilde{\rho}_{\pm}$ sind bei senkrechter Inzidenz gegeben durch:

$$\tilde{\rho}_{\pm}(\omega) = \frac{\tilde{n}_{\pm}(\omega) - 1}{\tilde{n}_{\pm}(\omega) + 1}. \quad (2.30)$$

Der komplexe Kerr-Effekt ergibt sich nun aus der Differenz der Reflexionskoeffizienten der beiden Polarisationsmoden:

$$\tilde{\Theta}_K = \Theta_K - i\eta_K = i\frac{\tilde{\rho}_+ - \tilde{\rho}_-}{\tilde{\rho}_+ + \tilde{\rho}_-} \approx 2i\frac{\tilde{n}_+ - \tilde{n}_-}{\tilde{n}^2 - 1}, \quad (2.31)$$

wobei hier die Differenz der Brechungsindizes bzw. der Reflexionskoeffizienten als klein angenommen wird ($\tilde{n}_+ - \tilde{n}_- \ll \tilde{n}$, $\tilde{\rho}_+ - \tilde{\rho}_- \ll \tilde{\rho}$). Das heißt, in die komplexe Kerr-Drehung gehen neben den Nichtdiagonal- auch die Diagonalelemente des Tensors der DK ein. Mit Hilfe der Beziehung 2.26 sowie dem Ausdruck 2.29 lassen sich nun Kerr-Drehung und -Elliptizität als Funktion von $\tilde{\varepsilon}_{xx}$ und $\tilde{\varepsilon}_{xy}$ darstellen.

$$\Theta_K = \frac{B\varepsilon_{2xy} + A\varepsilon_{1xy}}{A^2 + B^2}, \quad (2.32)$$

$$\eta_K = \frac{A\varepsilon_{2xy} - B\varepsilon_{1xy}}{A^2 + B^2}, \quad (2.33)$$

wobei A und B Funktionen der diagonalen optischen Konstanten sind:

$$A = n^3 - 3nk^2 - n, \quad B = -k^3 + 3n^2k - k. \quad (2.34)$$

Aus diesen Beziehungen geht auch sogleich hervor, daß die Kerr-Rotation und -Elliptizität sehr große Werte erreichen können, falls die Koeffizienten A und B klein sind, d. h. $\tilde{\varepsilon} \approx 1 + 0 \cdot i$ beträgt. In diesem Fall ist aber der Reflexionsgrad der Probe sehr gering, woraus folgt, daß ein großer Kerr-Effekt nicht zwangsläufig auf stark magnetooptisch aktive Interbandübergänge zurückzuführen sein muß. Das Auftreten eines großen Kerr-Effekts bei gleichzeitig eher kleinen Werten von $\tilde{\varepsilon}_{xy}$ ist daher auch unter dem Stichwort *optischer Verstärkungseffekt* bekannt.

Zu den wichtigsten dieser Verstärkungseffekte zählt der *Interferenzeffekt*, der eine Herabsetzung der Reflektivität der Probe durch eine dielektrische Deckschicht geeigneter Dicke beschreibt. Hierbei interferieren die vielfach reflektierten Strahlen destruktiv miteinander. Des Weiteren bekannt ist der *Plasmakanteneffekt*, bei dem ein Reflexionsminimum aufgrund der Absorption durch freie Ladungsträger in der Nähe der Plasmaenergie auftritt (siehe Kap. 2.1.2). Bei den beiden genannten Effekten tritt im allgemeinen eine Veränderung des Kerr-Spektrums auf. Die dritte Möglichkeit, die magnetooptischen Effekte mit optischen Methoden zu verstärken, besteht darin, die Probe durch ein dielektrisches Substrat ($d_{\text{Substrat}} \gg \lambda$) hindurch zu messen. Die gemessene Drehung und Elliptizität ist dann im gesamten Spektralbereich näherungsweise um den Faktor n_{Substrat} erhöht (*Interface-Effekt*) [8].

2.2.3 Mikroskopisches Modell

Das Auftreten von magnetooptischen Effekten kann verschiedene Ursachen besitzen. Im Falle von Materialien, die keine magnetische Ordnung besitzen, kommt es durch die

Zeeman-Aufspaltung [9] der Anfangs- und Endzustände zu unterschiedlichen Übergangsenergien für links(LZP)- und rechtszirkular polarisiertes(RZP) Licht. Die Auswahlregeln geben für LZP eine Änderung der magnetischen Quantenzahl $\Delta m = -1$, für RZP dagegen $\Delta m = +1$ vor (siehe Abb. 2.7). Durch die unterschiedlichen Resonanzfrequenzen für die beiden unterschiedlichen Polarisationsmoden bekommt man einen magnetooptischen Effekt.

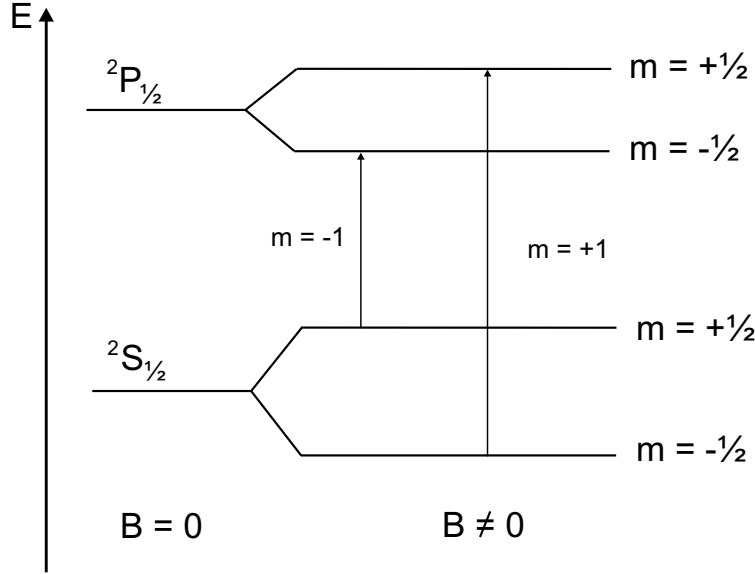


Abb. 2.7: Durch das Anlegen eines Magnetfeldes wird die Entartung der Zustände mit unterschiedlichen Magnetquantenzahlen m aufgehoben. Dadurch ergeben sich unterschiedliche Übergangsenergien für links- ($\Delta m = -1$) und rechtszirkular ($\Delta m = +1$) polarisiertes Licht.

Die durch den Zeeman-Effekt auftretenden magnetooptischen Effekte sind in der Regel sehr klein, da die Aufspaltung durch das Magnetfeld nur in der Größenordnung von einigen Zehntel meV liegt:

$$\hbar\omega_c = \frac{eB}{m^*} \quad (2.35)$$

Bei einem Feld von $B = 2,5$ T und einer effektiven Masse von $m^* = m_0$ ist $\hbar\omega_c = 2,89 \cdot 10^{-4}$ eV. Die Faraday-Rotation ist direkt mit der Differenz der Brechungsindizes für LZP und RZP verknüpft (Becquerel-Gleichung):

$$\Theta_F = \frac{\omega}{2c} d \Delta n, \quad (2.36)$$

wobei $\Delta n = n_+ - n_-$ wegen Gl. 2.25 und Gl. 2.26 bei experimentell zugänglichen Magnetfeldern linear mit dem angelegten Feld zunimmt. d ist die Dicke des durchstrahlten Materials.

Beispielsweise lässt sich so für ein Schwerflint-Glas (SF57) aus dem Dispersionsverlauf (Abb. 2.8 a) eine spezifische Faradaydrehung von $\Theta_F = 25,2^\circ \text{cm}^{-1} \text{T}^{-1}$ bei einer Photonenenergie von 2,41 eV errechnen, was mit dem gemessenen Wert von $\Theta_F = 18,4^\circ \text{cm}^{-1} \text{T}^{-1}$

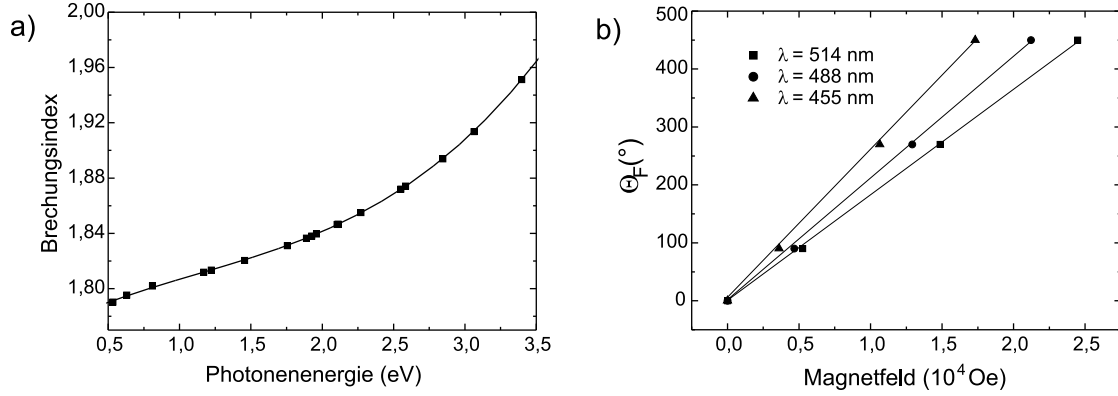


Abb. 2.8: (a): Dispersionskurve für Schwerflintglas SF57 [10]. Bei einem angelegten Feld von $B = 2,5$ T beträgt die Aufspaltung des Brechungsindex bei $E = 2,41$ eV ($\hat{=}\lambda = 514$ nm) $\Delta n = 1,9 \cdot 10^{-5}$. (b): Gemessene Feldabhängigkeit der Faradaydrehung von SF57 ($d = 10$ cm). Die spezifische Drehung nimmt mit abnehmender Lichtwellenlänge zu, wie es bei normaler Dispersion zu erwarten ist.

von der Größenordnung her gut übereinstimmt. Ebenso nimmt die Faraday-Drehung linear mit dem äußeren Feld zu, wie Abb. 2.8 b zeigt. Es sei hierbei darauf hingewiesen, daß eine genauere Beschreibung des Faraday-Effekts neben dem Becquerel-Term (Gl. 2.36) noch zwei weitere Terme enthält, zum einen den *Darwin-Term*, der die Ableitung des Brechungsindex nach der Oszillatorstärke enthält sowie die *paramagnetische Rotation*, die die Temperaturabhängigkeit der Besetzung des Grundzustands berücksichtigt [11]. Diese beiden Beiträge wurden in dieser Beispielrechnung vernachlässigt.

In magnetisch ordnenden Materialien dagegen beobachtet man einen Faraday- bzw. Kerr-Effekt, der um einige Größenordnungen höher ist als bei para- oder diamagnetischen Stoffen. So wurden z. B. in ferromagnetischen Europiumchalkogenid-Filmen Faraday-Rotationen von einigen 10^6 °/cm gemessen [12, 13]. Analog findet man beim magneto-optischen Kerr-Effekt von Ferromagneten typischerweise Drehwinkel und Elliptizitäten im Bereich von einigen Zehntel Grad, so etwa bei den Übergangsmetallen Eisen, Kobalt und Nickel [14]. Die Faraday- bzw. Kerr-Drehung hängt nicht vom angelegten Magnetfeld, sondern von der Magnetisierung der Probe ab. Daher ist es auch möglich, komplexe magnetische Phasendiagramme mit Hilfe magnetooptischer Effekte zu bestimmen [15].

Die Größe der magnetooptischen Effekte in Ferromagneten ist somit nicht durch die Zeeman-Aufspaltung zu erklären. Vielmehr ist gezeigt worden, daß sie proportional zur *Spin-Bahn-Energie* E_{SO} sind [16, 17, 18], die die Bahnbewegung des Elektrons an die Magnetisierung koppelt und die Zeeman-Energie bei Ferromagneten ca. 3 Größenordnungen übersteigen kann [8]. Analog zur Lorentz-Kraft auf eine bewegte Ladung wirkt auf einen bewegten Spin (\vec{s}) der Geschwindigkeit \vec{v} ein Moment \vec{M} , das proportional ist zum

elektrostatischen Feld $\vec{E} = -\nabla V$ des Kerns (V : Kernpotential):

$$\vec{M} = -\vec{\mu} \times \left(\frac{1}{c} \vec{v} \times \vec{E}\right). \quad (2.37)$$

$\vec{\mu} = e g \hbar (2m_e c)^{-1} \vec{s}$ ist das magnetische Moment des Elektrons (mit dem g-Faktor $g \approx 2$ für Elektronen). Die Spin-Bahn-Energie eines Elektrons ist nun gegeben durch:

$$E_{SO} = \vec{\mu} \cdot \left(\frac{1}{2c} \vec{v} \times \vec{E}\right) \quad (2.38)$$

$$= \frac{e g \hbar}{4m^2 c^2} \vec{s} \cdot (\vec{p} \times \vec{E}) \quad (2.39)$$

Der Faktor $1/2$ stammt von der sogenannten *Thomas-Korrektur*. Das Kernpotential kann als Zentralpotential angesehen werden:

$$\vec{E}(\vec{r}) = -\frac{1}{e} \nabla_r V(\vec{r}) = -\frac{1}{er} \frac{dV}{dr} \vec{r}, \quad (2.40)$$

wonach Gl. 2.38 umgeformt werden kann zu:

$$E_{SO} = -\frac{g \hbar}{4m^2 c^2 r} \frac{dV}{dr} \vec{s} \cdot \vec{p} \times \vec{r} \quad (2.41)$$

$$= -\frac{g \hbar^2}{4m^2 c^2 r} \frac{dV}{dr} \vec{s} \cdot \vec{l}. \quad (2.42)$$

Wenn über alle Elektronen des Körpers aufsummiert wird, ist aus Gleichung 2.38 sofort ebenfalls der proportionale Zusammenhang zwischen dem magnetooptischen Effekt und der Gesamtmagnetisierung des Materials $\sum_i \vec{s}_i$ zu entnehmen.

Die eben gezeigte, halbklassische Ableitung bringt nicht die exakten Werte für die Spin-Bahn-Energie, aber sie ist hinreichend, um die grundsätzlichen Zusammenhänge deutlich zu machen. Eine korrekte Herleitung des Spin-Bahn-Terms kann mit Hilfe der nichtrelativistischen Dirac-Theorie erfolgen und ist z. B. in [19] nachzulesen.

2.2.4 Magnetooptische Linienformen

In Kapitel 2.1.2 haben wir bereits anhand des Lorentz-Modells diskutiert, welchen spektralen Verlauf das Diagonalelement der dielektrischen Funktion beim Vorhandensein von Interbandübergängen bzw. freien Elektronen nimmt. In diesem Abschnitt wird jetzt eine Erweiterung des Lorentzmodells zur Beschreibung magnetooptischer Effekte sowie die prinzipiellen Dispersionsverläufe vorgestellt.

Interbandübergänge

Ausgehend von Gl. 2.25 läßt sich die optische Leitfähigkeit für links- und rechtszirkular polarisiertes Licht darstellen:

$$\tilde{\sigma}_{\pm}(\omega) = \frac{Ne^2}{m^*} \frac{i\omega}{\omega_0^2 - \omega^2 \pm \omega\omega_c + i\gamma\omega}. \quad (2.43)$$

In diesem klassischen Modell sind allerdings keine Effekte berücksichtigt, die von den Auswahlregeln, der unterschiedlichen Besetzung der Zustände sowie der Spinpolarisation der Bänder herrühren. Aus diesem Grund werden für jeden Übergang für links- und rechtszirkular polarisiertes Licht unterschiedliche Oszillatorstärken f^+ bzw f^- eingeführt [20]. Somit kann die optische Leitfähigkeit in einem Material mit j Interbandübergängen dargestellt werden als:

$$\tilde{\sigma}_{\pm} = \sum_j f_j^{\pm} \frac{Ne^2}{m_j^*} \frac{i\omega}{\omega_{0j}^2 - \omega^2 \pm \omega\omega_{cj} + i\gamma_j\omega}, \quad (2.44)$$

Der Übergang von der zirkularen zur linearen Basis analog zu Gl. 2.29

$$\tilde{\sigma}_{\pm} = \tilde{\sigma}_{xx} \pm i\tilde{\sigma}_{xy} \quad (2.45)$$

liefert folgenden Zusammenhang zwischen $\tilde{\sigma}_{\pm}$ und den Diagonal- und Nichtdiagonalelementen des Tensors der optischen Leitfähigkeit in kartesischen Koordinaten:

$$\tilde{\sigma}_{xx} = (\tilde{\sigma}_+ + \tilde{\sigma}_-)/2 \quad (2.46)$$

$$\tilde{\sigma}_{xy} = (\tilde{\sigma}_+ - \tilde{\sigma}_-)/2i. \quad (2.47)$$

Ausdruck 2.44 wird damit zu:

$$\tilde{\sigma}_{xx} = \sum_j \frac{iNe^2\omega}{2m_j^*} \frac{(f^+ + f^-)(\omega_{0j}^2 - \omega^2 + i\omega\gamma_j) - (f^+ - f^-)\omega\omega_{cj}}{(\omega_{0j}^2 - \omega^2 + i\omega\gamma_j)^2 - (\omega\omega_{cj})^2} \quad (2.48)$$

$$\tilde{\sigma}_{xy} = \sum_j \frac{Ne^2\omega}{2m_j^*} \frac{(f^+ - f^-)(\omega_{0j}^2 - \omega^2 + i\omega\gamma_j) - (f^+ + f^-)\omega\omega_{cj}}{(\omega_{0j}^2 - \omega^2 + i\omega\gamma_j)^2 - (\omega\omega_{cj})^2} \quad (2.49)$$

Aus Gl. 2.49 lassen sich zwei verschiedene Abhängigkeiten des Nichtdiagonalelements von der Energie ableiten. Falls die Oszillatorstärken für links- und rechtszirkular polarisiertes Licht gleich sind ($f_+ = f_-$), ist der magnetooptische Effekt gegeben durch den Aufspaltungsterm ω_{cj} . Man spricht von einer *diamagnetischen* Linienform. Im anderen Fall (*paramagnetische* Linienform) hat man unterschiedliche Oszillatorstärken f_+ und f_- unter Vernachlässigung der Aufspaltung der Resonanzfrequenz. Die spektralen Verläufe der nichtdiagonalen optischen Leitfähigkeit sind in Abb. 2.9 dargestellt.

Der absorptive Teil σ_{2xy} zeigt bei der diamagnetischen Linienform einen dispersiven, bei der paramagnetischen Linienform einen dissipativen Verlauf, während es sich bei σ_{1xy} umgekehrt verhält. Selbstverständlich sind auch Zwischenformen möglich, beim Vorhandensein sowohl eines endlichen ω_{cj} als auch $f_+ - f_-$.

Leitungselektronenbeitrag

Auch die freien Leitungselektronen können zur nichtdiagonalen optischen Leitfähigkeit beitragen, wenn sie spinpolarisiert sind. Erskine und Stern [21] haben für den Drude-Anteil von $\tilde{\sigma}_{xy}$ folgende Beziehung angegeben:

$$\tilde{\sigma}_{xy} = \frac{\omega_p^2}{4\pi} \sigma_{cond} \frac{P_0}{ev_0} \frac{\gamma}{\gamma + i\omega}. \quad (2.50)$$

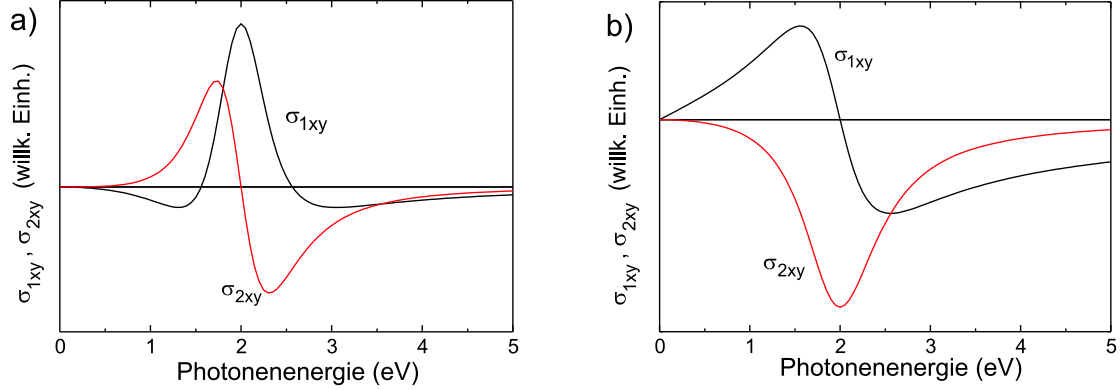


Abb. 2.9: (a): Nichtdiagonalelement der optischen Leitfähigkeit σ_{xy} für einen Interbandübergang mit einer Aufspaltung der Resonanzfrequenz ($\hbar\omega_c = 0,1$ eV), aber ohne Spinpolarisation. (b): σ_{xy} für einen vollständig spinpolarisierten Interbandübergang unter Vernachlässigung der Aufspaltung. In beiden Fällen wurde die Übergangsenergie $\hbar\omega_0 = 2$ eV und die Dämpfung $\hbar\gamma = 1$ eV gewählt.

Die Spinpolarisation σ_{cond} geht also linear in das Nichtdiagonalelement ein. Der Ausdruck P_0/ev_0 stellt einen Polarisationsstrom dar, der proportional ist zur Stärke der Spin-Bahn-Kopplung [22]. Abb. 2.10 zeigt Real- und Imaginärteil der nichtdiagonalen optischen Leitfähigkeit nach Gl. 2.50.

Wenn es also gelingt, die gemessene nichtdiagonale Leitfähigkeit mit Hilfe der Gleichungen 2.49 und 2.50 in die Interband- und Intrabandanteile zu zerlegen, kann damit neben den Interbandparametern die Spinpolarisation der Leitungselektronen abgeschätzt werden. Eine genaue Bestimmung erscheint jedoch schwierig, da neben der Dämpfung auch das Quadrat der Plasmafrequenz sowie der Spin-Bahn-Beitrag P_0/ev_0 linear zum Nichtdiagonalelement beitragen und über diese Größen selbst teilweise nur grobe Aussagen gemacht werden können.

2.3 Grundlagen des Magnetismus

Aufgrund der Vielfältigkeit der magnetischen Eigenschaften der verschiedenen Stoffe ist im Rahmen dieser Arbeit selbstverständlich keine komplette Darlegung der Grundlagen des Magnetismus möglich. Aus diesem Grund wird in diesem Kapitel nur auf die elementaren Formen der Wechselwirkung von Materie mit magnetischen Feldern eingegangen, den Dia-, Para- und Ferromagnetismus. Hierzu existiert eine Vielzahl von Artikeln und Lehrbüchern, die auch einen viel tiefer gehenden Einblick in die Theorie des Magnetismus geben können. Die im Folgenden dargestellten Sachverhalte sind [23] und [24] entnommen.

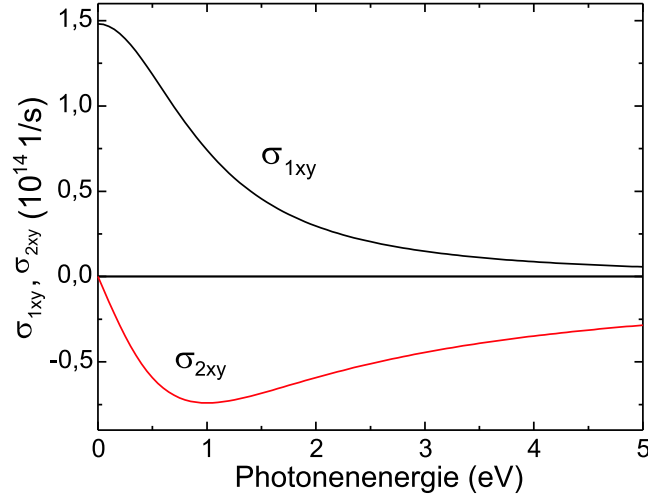


Abb. 2.10: Beitrag der freien Elektronen zur nichtdiagonalen optischen Leitfähigkeit nach Gl. 2.50. Die gewählten Parameter: Plasmaenergie $\hbar\omega_p = 3,5$ eV; Spinpolarisation $\sigma_d = 1$; $P_0/ev_0 = 0,1$; und die Dämpfung $\hbar\gamma = 1$ eV.

Die magnetischen Eigenschaften von Materialien werden im wesentlichen durch ihre elektronische Konfiguration bestimmt⁴. Diese ist im einfachsten Fall durch die *Hundschen Regeln* gegeben. Die Wirkung einer äußeren Magnetfeldstärke H auf einen Stoff wird durch die *magnetische Suszeptibilität* χ ausgedrückt:

$$B = (1 + \chi)\mu_0 H, \quad (2.51)$$

wobei $1 + \chi = \mu_r$ auch als *relative magnetische Permeabilität* bezeichnet wird. B ist die magnetische Induktion. $\mu_0 = 4\pi \cdot 10^{-7} \text{ VsA}^{-1}\text{m}^{-1}$ ist die magnetische Feldkonstante des Vakuums. Die Magnetisierung M eines Stoffes wird beschrieben durch:

$$M = \chi H. \quad (2.52)$$

2.3.1 Dia- und Paramagnetismus

Die Bahnbewegung des Elektrons entspricht einem Ringstrom, der wiederum ein magnetisches Moment erzeugt. Wenn nun auf das sich bewegende Elektron ein äußeres Magnetfeld wirkt, so bewirkt dieses, unabhängig von der Richtung des Bahnmoments, eine Änderung desselben, die dem Feld entgegenwirkt. Man bekommt also eine induzierte Magnetisierung des Atoms, die dem angelegten Feld entgegengerichtet ist ($\chi < 0$). Diese

⁴ Auch die Nukleonen besitzen ein magnetisches Moment, dieses ist jedoch einige Größenordnungen geringer als das Moment des Elektrons.

Eigenschaft, die alle Stoffe besitzen, wird als *Diamagnetismus* bezeichnet. Der Diamagnetismus ist eine temperaturunabhängige Eigenschaft, und die Effekte sind in der Regel sehr klein ($|\chi| \approx 10^{-3} - 10^{-5}$). Eine Ausnahme bilden hier die Supraleiter, bei denen unterhalb einer charakteristischen Temperatur T_c ein völliges Verschwinden des elektrischen Widerstandes beobachtet wird. Supraleitende Materialien zeigen unterhalb T_c den Meißner-Ochsenfeld-Effekt, d. h. es tritt eine vollständige Verdrängung des Magnetfelds aus dem Supraleiter auf. Es handelt sich also um ideale Diamagneten mit einem χ von -1.⁵

Gibt es in einem Material jedoch eine nur teilweise gefüllte Schale, so kann sich ein Gesamtmoment $\neq 0$ einstellen. Das Anlegen eines äußeren Feldes bewirkt hier nun, daß die vorher in ihrer Richtung ungeordneten Momente sich parallel zu diesem Feld ausrichten können, d. h. eine Vorzugsrichtung in Feldrichtung bekommen. Das Material erfährt also eine positive Magnetisierung ($\chi > 0$) durch das Feld, die man als *Paramagnetismus* bezeichnet. Dieser ist betragsmäßig normalerweise deutlich größer als der diamagnetische Beitrag. Zudem ist die paramagnetische Suszeptibilität im allgemeinen feld- und temperaturabhängig:

$$M = M_0 \cdot B_J(x) \quad (2.53)$$

mit der *Brillouinfunktion*

$$B_J(x) = \frac{2J+1}{2J} \coth\left(\frac{(2J+1)x}{2J}\right) - \frac{1}{2J} \coth\frac{x}{2J} \quad (2.54)$$

und $x = \frac{Jg\mu_B H}{kT}$. M_0 ist die Magnetisierung der Probe, falls alle Spins parallel zum Feld ausgerichtet sind, J ist der Gesamtdrehimpuls. Abb. 2.11 zeigt die Abhängigkeit der Magnetisierung für Paramagneten nach der Brillouin-Funktion.

Für kleine Werte von x , also bei geringen Feldern und/oder hohen Temperaturen, können in der Entwicklung des Cotangens hyperbolicus in der Brillouinfunktion die höheren Terme vernachlässigt werden und man bekommt eine lineare Abhängigkeit der Magnetisierung von x . Betrachtet man dann die Magnetisierung bei konstantem Feld, dann folgt das bekannte Curie-Gesetz:

$$M = \frac{N\mu_{para}^2}{3k} \frac{1}{T} B = \frac{C}{T} \frac{B}{\mu_0} \quad (2.55)$$

mit der Curie-Konstante C . Die Curie-Konstante ist demnach mit dem paramagnetischen Moment $\mu_{para} = g_J \mu_B \sqrt{J(J+1)}$ verknüpft. N ist die Teilchenkonzentration, g_J ist der *Landé-Faktor*:

$$g_J = 1 + \frac{J(J+1) + S(S+1) - L(L+1)}{2J(2J+1)}, \quad (2.56)$$

wobei L der Gesamtbahndrehimpuls und S den Gesamtspin bezeichnen. Diese Betrachtungen gelten für den Beitrag der nicht abgeschlossenen Elektronenschalen zur paramagnetischen Suszeptibilität. Daneben liefern in Metallen auch die Leitungselektronen einen paramagnetischen Beitrag, die sogenannte *Pauli-Suszeptibilität*. Diese ist betragsmäßig in der Regel allerdings geringer als der Anteil der gebundenen Elektronen und ist außerdem nahezu temperaturunabhängig.

⁵ Diese speziellen Eigenschaften von Supraleitern verschwinden allerdings bei äußeren Feldern, die einen (temperaturabhängigen) kritischen Wert H_c überschreiten.

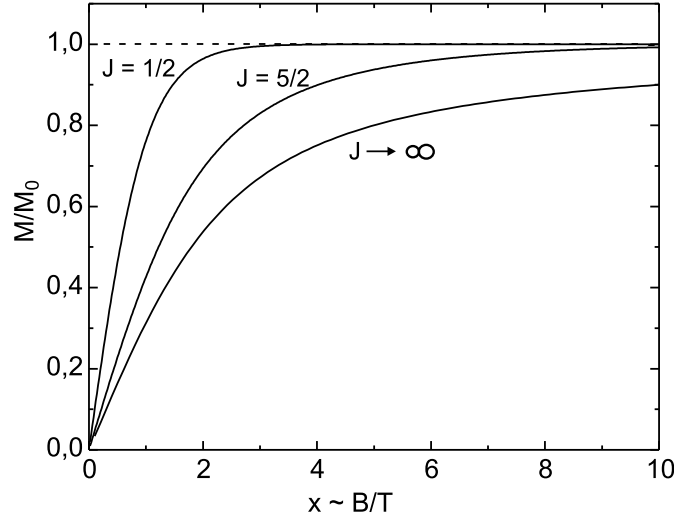


Abb. 2.11: Brillouin-Funktion zur Beschreibung der Temperatur- und Feldabhängigkeit der Magnetisierung eines Paramagneten für verschiedene Gesamtdrehimpulse J .

2.3.2 Kollektiver Magnetismus

Bei paramagnetischen Materialien führt ein äußeres Feld dazu, daß sich die Spins parallel zur Feldrichtung ausrichten. Hierbei wechselwirken die einzelnen Spins allerdings nicht miteinander. Somit gibt es bei Paramagneten keine Magnetisierung ohne ein äußeres Magnetfeld.

Bei einigen Festkörpern ist es nun allerdings so, daß es eine Wechselwirkung zwischen benachbarten Momenten gibt. Diese führt dazu, daß sich benachbarte Spins *ohne äußeres Feld* zum Beispiel parallel oder antiparallel zueinander ausrichten. Der erstgenannte Fall tritt unter anderem beim Eisen (lat. *ferrum*) auf, wonach diese Eigenschaft als *Ferromagnetismus* bezeichnet wird. Eine Antiparallelstellung der Spins wird dagegen *antiferromagnetisch* genannt. In diesem Fall kompensieren sich die Spinmomente, so daß daraus eine Gesamtmagnetisierung von Null resultiert. Es gibt darüber hinaus noch vielfältige andere Arten der Anordnung der Spins beim Vorliegen von kollektivem Magnetismus, so z. B. eine antiparallele Kopplung von Momenten mit unterschiedlichem Betrag (*Ferrimagnetismus*) oder schraubenförmige Spinstrukturen.

Der kollektive Magnetismus rührt daher, daß es eine Austauschwechselwirkung gibt, die zu einer Parallel- bzw. Antiparallelstellung der Spins führt. Die Größe der Austauschwechselwirkung ist proportional zum *Austauschintegral* J . Im *Heisenberg-Modell* wird die Wechselwirkung der Elektronenspins durch folgenden Hamiltonoperator beschrieben:

$$\hat{H} = - \sum_{i,j} J_{ij} \vec{S}_i \cdot \vec{S}_j, \quad (2.57)$$

für den Fall, daß kein äußeres Feld B anliegt. Wenn $B \neq 0$ ist, wird der Hamiltonian um einen zusätzlichen Term erweitert, der das magnetische Moment an das Feld koppelt. Das Heisenberg-Modell geht von der Annahme lokalisierter Spins aus und stellt daher vor allem für die magnetischen Eigenschaften von ferromagnetischen Isolatoren oder Seltenerd-Verbindungen eine gute Näherung dar. Ein positives Vorzeichen von J bedeutet einen Energiegewinn bei paralleler Einstellung der Spins, d. h. das Material wird ferromagnetisch sein. Ein negatives J begünstigt dagegen eine antiparallele Orientierung der Spins. In Übergangsmetall-Legierungen wird der Magnetismus dagegen von den d -Elektronen getragen, in denen die Annahme lokalisierter Spins im allgemeinen nicht mehr gültig ist. Die Beschreibung des bandartigen Magnetismus kann in der Ein-Teilchen-Näherung vereinfacht durch das *Stoner-Modell* beschrieben werden. Dort wird davon ausgegangen, daß die Bänder abhängig von der Spinrichtung energetisch aufgespalten werden. Die Bedingung für das Auftreten von Ferromagnetismus im Stoner-Modell ist durch das Produkt aus der Zustandsdichte am Fermi-niveau $D(E_F)$ und dem Stoner-Austauschintegral I gegeben:

$$I \cdot D(E_F) > 1. \quad (2.58)$$

In den folgenden Ausführungen wird der Fall der ferromagnetischen Kopplung näher betrachtet.

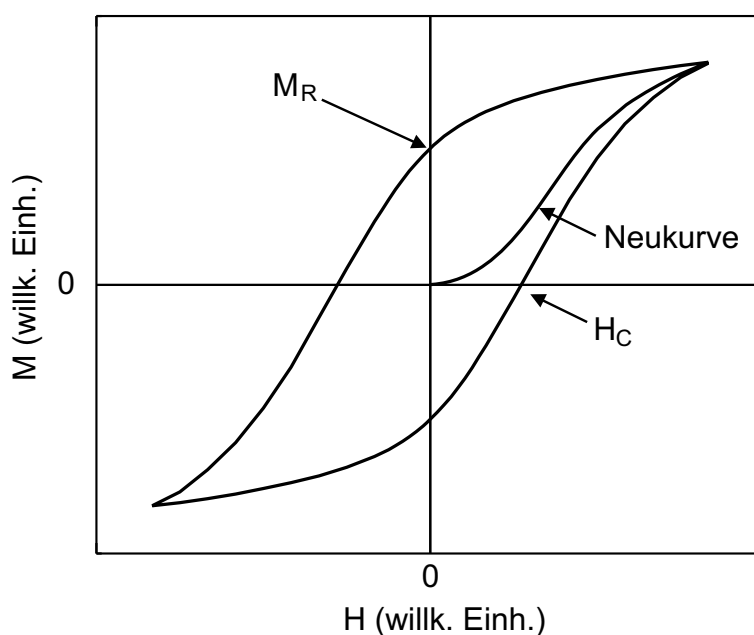


Abb. 2.12: Abhängigkeit der Magnetisierung eines Ferromagneten vom angelegten Feld. M_R bezeichnet die Remanenzmagnetisierung, H_C die Koerzitivfeldstärke. Die Neukurve zeigt den Anstieg der Magnetisierung mit dem Feld bei erstmaligem Anlegen eines Feldes an die Probe.

Abb. 2.12 zeigt den typischen Verlauf der Feldabhängigkeit der Magnetisierung eines Ferromagneten. Bei erstmaligem Anlegen eines Feldes folgt der Verlauf der sogenannten

Neukurve. Man sieht, daß ohne ein angelegtes Feld die Gesamtmagnetisierung zunächst Null beträgt. Dies liegt daran, daß es viele verschiedene *Domänen* gibt, innerhalb derer die Momente jeweils parallel angeordnet sind. Die Magnetisierungsrichtungen der unterschiedlichen Domänen dagegen sind bei einer unmagnetisierten Probe wiederum statistisch verteilt. Das Anlegen eines Feldes führt nun zu einem raschen Anstieg der Magnetisierung, da zum einen die Momente in den einzelnen Domänen durch das Feld ausgerichtet werden, zum anderen diejenigen Domänen, deren Magnetisierungsrichtung Komponenten enthalten, die parallel zum Feld liegen, sich auf Kosten der anderen ausdehnen. Sind schließlich alle Domänen parallel zum Feld magnetisiert, ist der Maximalwert der Magnetisierung erreicht, die *Sättigungsmagnetisierung* M_S . Ein weiteres Vergrößern des äußeren Feldes bewirkt dann keine Veränderung von M mehr.

Wird die Feldstärke wieder verringert, bleiben die Domänen zunächst in Feldrichtung angeordnet, so daß das Material auch bei einem Abschalten des Feldes noch eine *Remanenzmagnetisierung* M_R besitzt. Dies liegt daran, daß die Verschiebungen der *Blochwände*, d. h. der Grenzbereiche benachbarter Domänen, zum Teil nicht reversibel sind. Eine andere charakteristische Größe im M/H -Diagramm ist die *Koerzitivfeldstärke* H_C . Sie gibt an, welches Feld (mit negativem Vorzeichen) angelegt werden muß, um die Gesamtmagnetisierung wieder auf Null zu bringen. Bei weiterer Vergrößerung des Feldes werden die Domänen sukzessive umgeklappt bzw. in Feldrichtung gedreht, bis die Magnetisierung bei hinreichend hohem Feld $-M_S$ beträgt. Ein Umkehren der Feldrichtung bewirkt dann wiederum ein Ausrichten der Domänen in die ursprüngliche Feldrichtung. Einen kompletten Umlauf der M/H -Kurve bezeichnet man als *Hysteresekurve*.

Jeder Ferromagnet besitzt eine *Curie-Temperatur* T_C , unterhalb der das Material die oben beschriebenen magnetischen Eigenschaften, d. h. eine Remanenzmagnetisierung und eine Koerzitivfeldstärke besitzt. M_R und H_C hängen wiederum selbst von der Temperatur ab. Oberhalb von T_C dagegen verhält sich der Stoff wie ein Paramagnet, wobei die Temperaturabhängigkeit der Magnetisierung dem Curie-Weiss-Gesetz folgt:

$$\chi = \left(\frac{dM}{dH} \right)_{H=0} = \frac{C}{T - T_C}. \quad (2.59)$$

Unterhalb von T_C nimmt bei konstantem Feld die Magnetisierung mit zunehmender Temperatur ab. In der Nähe von T_C kann man die Temperaturabhängigkeit aus der *Molekularfeldnäherung* berechnen. In dieser wird die Magnetisierung durch ein zusätzliches inneres Feld ersetzt, so daß man ein effektives Feld bekommt, das der Summe aus äußerem und innerem Feld entspricht. Dieses wird in die Brillouin-Funktion (Gl. 2.54) eingesetzt. Für $T \approx T_C$ liefert die Rechnung schließlich eine wurzelförmige Abhängigkeit:

$$\frac{M(T)}{M(T=0)} = \sqrt{1 - \frac{T}{T_C}}. \quad (2.60)$$

3. Experimentelle Grundlagen und Aufbau

3.1 Das Tieftemperatur-Kerrspektrometer in der Hochmagnetfeldanlage

3.1.1 90°-Polarisationsmodulation

Da die magnetooptischen Reflexionseffekte in der Regel sehr klein sind (in der Größenordnung von einigen Zehntel Grad), wird an die Empfindlichkeit der Messung hohe Anforderungen gestellt. So würde eine einfache Messung der Intensität des Lichts in Abhängigkeit vom Analysatorwinkel α nicht den gewünschten Erfolg bringen, da das Signal am Detektor $\sim \cos^2 \alpha$ ist, was das Auffinden des Intensitätsminimums erschwert. Eine Steigerung der Empfindlichkeit wird mit *modulationsspektroskopischen* [25, 26] Verfahren erreicht, wobei sich besonders eine Modulation der zu messenden Größe, im vorliegenden Fall also der Polarisation des Lichts, anbietet. Auf diese Art und Weise lassen sich Unterschiede in der Polarisationsrichtung von bis zu einigen Bogensekunden nachweisen, was für die magnetooptischen Untersuchungen hinreichend ist.

Zur Untersuchung des magnetooptischen Kerr-Effekts wurde ein Spektrometer nach [27] aufgebaut, das mit einer Polarisations-Modulations-Meßtechnik arbeitet. Hierbei werden abwechselnd zwei Polarisatoren durch einen mechanischen Biegeschwinger in den Strahlengang geschwenkt, deren Polarisationsebenen um 90° gegeneinander verkippt sind. Die experimentelle Verwirklichung dieser Anordnung wird in Kap. 3.1.2 beschrieben.

Zur Messung der Kerr-Elliptizität wird dem Biegeschwinger ein einstellbarer Phasenschieber, ein sogenannter *Soleil-Babinet-Kompensator*, nachgeschaltet, der das linear polarisierte Licht in zirkular polarisiertes umwandelt, wobei je nach Biegeschwingerposition links- bzw. rechtszirkular polarisiertes Licht erzeugt wird. Die Kerr-Elliptizität bekommt man aus der Differenz der Reflexionskoeffizienten der beiden Moden (s. Abb. 3.1):

$$\eta_K = \frac{\tilde{\rho}_+ - \tilde{\rho}_-}{\tilde{\rho}_+ + \tilde{\rho}_-}, \quad (3.1)$$

woraus mit $I_{\pm}/I_0 = |\tilde{\rho}_{\pm}|^2$ und $I \approx I_+ \approx I_-$ folgt:

$$\eta_K = \frac{I_+ - I_-}{I_+ + I_- + 2\sqrt{I_+ I_-}} \simeq \frac{\Delta I}{4I}. \quad (3.2)$$

Am Empfänger mißt man nun mit Hilfe eines Lock-in Verstärkers das Differenzsignal $\Delta I = I_+ - I_-$ sowie mit einem Multimeter den Gleichstromanteil I_0 . Das linear polarisierte Licht läßt sich als Überlagerung einer links- und rechtszirkular polarisierten Welle auffassen. Somit ergibt sich die Intensität des Gleichstromsignals zu:

$$I_0 = I_+ + I_-, \quad (3.3)$$

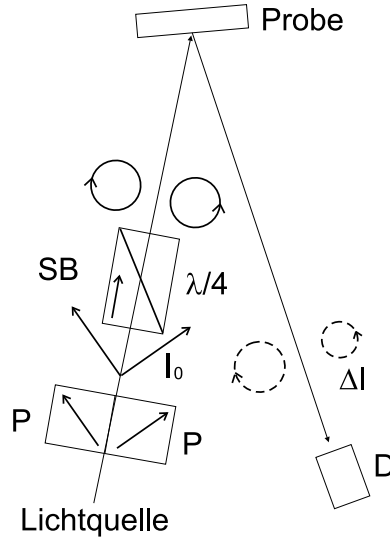


Abb. 3.1: Prinzipielle Darstellung der Messung der Kerr-Elliptizität. Mit Hilfe eines Soleil-Babinet-Kompensators (SB) mit einer Phasenverschiebung von $\lambda/4$ werden links- bzw. rechtszirkular polarisierte Wellen hergestellt. Das Differenzsignal ΔI tritt auf, falls nach der Reflexion an der Probe am Detektor D unterschiedliche Absorption für LZP und RZP (gestrichelt dargestellt) gemessen wird.

und die Kerr-Elliptizität zu

$$\eta_K = \frac{\Delta I}{2I_0}. \quad (3.4)$$

Für die Messung der Kerr-Rotation wird auf den Soleil-Babinet-Kompensator verzichtet und stattdessen ein Analysator vor dem Detektor platziert, dessen Polarisationsrichtung gerade in der Winkelhalbierenden der Richtungen der Biegeschwingerpolarisatoren liegt (siehe auch Abb. 3.2 a). Die vom Lock-In-Verstärker detektierte Differenz der beiden Intensitäten ist dann gleich Null, wenn keine Drehung der Polarisation stattfindet (Abb. 3.2 b). Ist die Probe dagegen magnetooptisch aktiv, findet eine gleichsinnige Verdrehung der durch den Biegeschwinger vorgegebenen Polarisationsrichtungen statt. Die Folge sind dann unterschiedliche Amplituden der von beiden Polarisatoren durchgelassenen Lichtwellen, und man bekommt am Lock-in-Verstärker ein Signal ΔI (Abb. 3.2 c) [28].

Die vom Analysator durchgelassene Intensität ist gegeben durch:

$$I(45^\circ \pm \Theta_K) = I_0 \cos^2(45^\circ \pm \Theta_K). \quad (3.5)$$

Das Differenzsignal am Empfänger beträgt folglich

$$\Delta I = I_0(\cos^2(45^\circ + \Theta_K) - \cos^2(45^\circ - \Theta_K)). \quad (3.6)$$

Mit der allgemein gültigen Beziehung $\cos^2 \gamma = \frac{1}{2}(1 + \cos 2\gamma)$ folgt daraus

$$\Delta I = \frac{1}{2}I_0(1 + \cos(90^\circ + 2\Theta_K) - 1 - \cos(90^\circ - 2\Theta_K)) \quad (3.7)$$

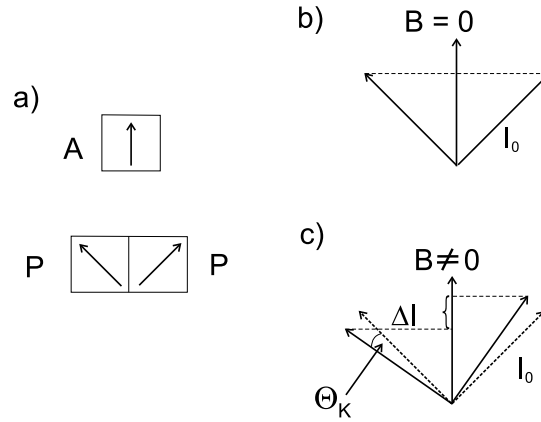


Abb. 3.2: Prinzipielle Darstellung der Messung der Kerr-Rotation. (a): Die Durchlaßrichtung des Analysators A liegt in der Winkelhalbierenden der Richtungen der beiden Biegeschwinger-Polarisatoren P. Falls keine Drehung vorliegt, ist die Intensität des vom Analysator durchgelassenen Lichts für beide Biegeschwingerpolarisatoren gleich (b). Das Vorhandensein einer Drehung (c) führt zum Auftreten eines Differenzsignals ΔI .

$$= \frac{1}{2} I_0 (\sin 2\Theta_K - \sin(-2\Theta_K)) \quad (3.8)$$

$$= \frac{1}{2} I_0 (2 \cdot \sin 2\Theta_K). \quad (3.9)$$

Bei kleinen Drehwinkeln ($\sin \Theta_K \approx \Theta_K$) schließlich läßt sich die Kerr-Rotation berechnen zu

$$\Theta_K = \frac{\Delta I}{2I_0}. \quad (3.10)$$

Theoretisch sollten sich daher am Oszilloskopen je nach Biegeschwingerstellung abwechselnd rechteckförmige Signale unterschiedlicher Amplitude ergeben. In Wirklichkeit kommt es aber zu einer Rundung und einem trapezförmigen Abfallen des Signals (siehe Abb. 3.3). Dieses hat folgende Ursachen:

- Das Zusammenkitten der beiden Polarisatoren bewirkt eine Abnahme des Signals, wenn der Biegeschwinger sich auf der Position der Kittschicht befindet.
- Die endliche Breite des Lichtflecks führt zu einer Verbreiterung der Flanke des Signalanstiegs bzw. -abfalls, da sich die Signale beider Polarisationsrichtungen teilweise überlagern.
- Die Rundung der Kurve hat ihre Ursache darin, daß durch die Bewegung des Biegeschwingers ja auch die Polarisationsrichtungen der Prismen um wenige Grad gedreht werden.

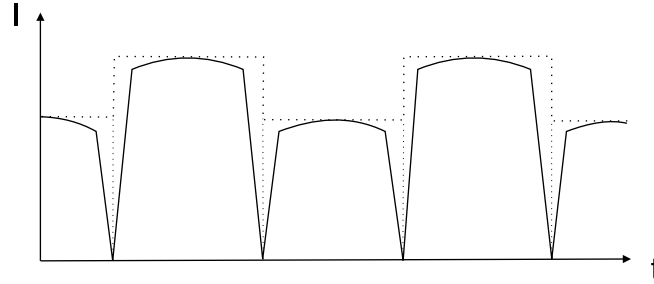


Abb. 3.3: Polarisationsmoduliertes Signal auf dem Oszilloskop als Funktion der Zeit t (das „ideale“ Signal ist durch eine gepunktete Linie dargestellt).

Alle diese Effekte führen zu einer Verkleinerung des ΔI -Signals, so daß die gemessene Drehung prinzipiell um einen Faktor korrigiert werden muß. Dieser Faktor kann einfach gemessen werden, indem man die Drehung mißt, die sich ergibt, nachdem der Analysator um einen definierten Winkel (z. B. 1°) verstellt wurde. Dieser Korrekturfaktor ist weitgehend wellenlängenunabhängig und besitzt für Rotations- und Elliptizitätsmessungen den gleichen Wert nahe 1 [27].

3.1.2 Experimentelle Details

Für die magnetooptischen Messungen an den $U_x\text{La}_{1-x}\text{S}$ -Proben wurde im Rahmen dieser Arbeit ein Spektrometer aufgebaut, das Messungen bei Temperaturen von ca. 10 K erlaubt. Die Anlage befindet sich in der Hochmagnetfeldanlage (HMFA) der TU Braunschweig an einem der dort vorhandenen Bittermagneten.

Bei den Bittermagneten handelt es sich um Elektromagneten, die aus ca. 200 massiven Kupferplatten (siehe Abb. 3.4) bestehen. Diese sind durch Kunststoffschichten jeweils voneinander isoliert. Aus diesen Kunststoff-Folien sind jeweils Kreissegmente von ca. 30° herausgeschnitten, während die Kupferplatten an einer Stelle geschlitzt sind, so daß sich durch eine geeignete Anordnung dieser Platten eine Spule verwirklichen läßt. Dabei wird das hohe Magnetfeld durch einen Stromfluß von bis zu 20 kA erzeugt. Sowohl die Kupferscheiben als auch die isolierenden Schichten sind mit einer regelmäßigen Anordnung von Löchern versehen, durch die das Kühlwasser fließt, das zum Abtransport der Verlustwärme benötigt wird. Beachtlich ist dabei, daß bei voller Leistungsaufnahme die Bitterspulen trotz des hohen Kühlwasserdurchflusses eine Temperatur von etwa 50°C erreichen können. Diese Magneten besitzen eine Leistungsaufnahme von bis zu 5,4 MW, wobei Felder von maximal 16,2 T erzeugt werden können. Einer der vorhandenen Bittermagneten erlaubt sogar Felder von bis zu 18,6 T, ist jedoch aufgrund eines Bohrungsdurchmessers von nur 32 mm nicht für optische Messungen geeignet. Die technischen Daten der HMFA-Magneten sind in Tab. 3.1 aufgeführt.

An dieser Stelle sollen kurz die Vor- und Nachteile von Bitter- und supraleitenden Magne-

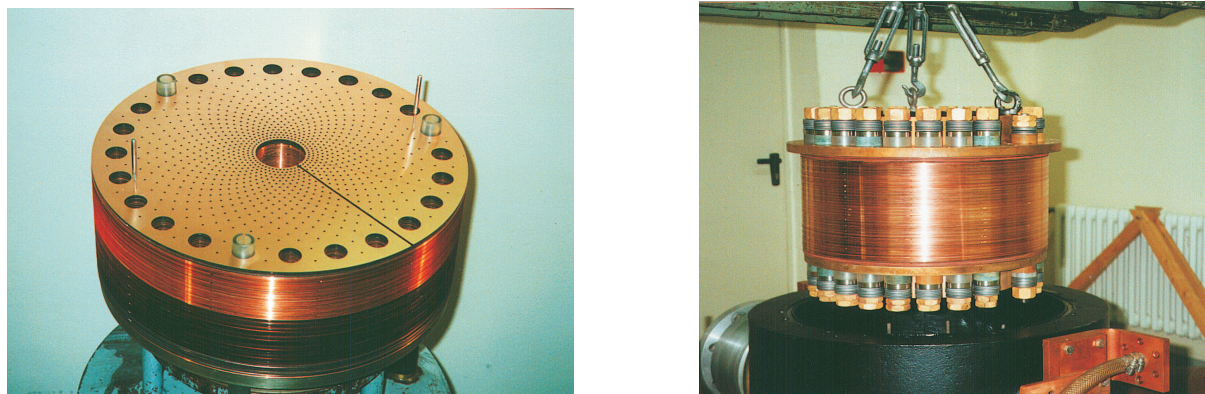


Abb. 3.4: Bittermagnet der Hochmagnetfeldanlage. Links: Aufsicht auf einen Stapel gelochter Kupferscheiben. Rechts: Fertig montierte Magnetspule kurz vor dem Einbau.

Magnettyp	Max. Feld	Max. Leistung	Kühlwasser	Bohrung
3 Bittermagnete	16,2 T	5,4 MW	300 m ³ /h	53,4 mm
1 Bittermagnet	18,6 T	5,4 MW	320 m ³ /h	32,4 mm
1 supraleitender Magnet	11 T	-	-	37 mm

Tab. 3.1: Technische Daten der in der Hochmagnetfeldanlage vorhandenen Magneten

ten gegenübergestellt werden. Beim Bittermagneten lassen sich hohe Felder in sehr kurzer Zeit (≤ 60 s) einstellen. Zusätzlich besitzt der eingestellte Strom eine außerordentlich gute Stabilität mit relativen Schwankungen von unter 10^{-5} . Nachteilig wirkt sich vor allem der hohe Energieverbrauch beim Bittermagneten aus.

Supraleitende Magneten sind dagegen energiesparend, allerdings ist eine Kühlung mit flüssigem Helium notwendig. Die erreichbaren Felder liegen deutlich niedriger als bei den Bitterspulen (vgl. auch Tab. 3.1).

Messungen des magnetooptischen Kerr-Effekts bei tiefen Temperaturen stoßen insbesondere aufgrund der den Kerr-Effekt überlagernden Faraday-Drehung von Kryostatenfenstern auf Probleme. Derartige unerwünschten Effekte können mit Hilfe des zeitaufwendigen Nullabgleichverfahrens (siehe Kapitel 3.2) eliminiert werden, indem die Kerr-Rotation gegen eine Referenz gemessen wird. Daher werden in Tieftemperatur-Kerrapparaturen, bei denen hohe Felder erforderlich sind, normalerweise supraleitende Magneten eingesetzt, deren Energieverbrauch keine besondere Rolle spielt. Ein solcher supraleitender Magnet stand zum Zeitpunkt dieser Arbeit aber nicht zur Verfügung.

Somit ist eine Meßmethode vonnöten, die die Aufnahme der Spektren mit hoher Geschwindigkeit ermöglicht. Versuche, eine bereits vorhandene, mit dem in Abschnitt 3.1.1 beschriebenen 90°-Polarisationsmodulations-Verfahren arbeitende Kerr-Apparatur für den Betrieb bei tiefen Temperaturen umzurüsten, stießen eben wegen des Vorhandenseins eines Kryostatenfensters auf große Schwierigkeiten. Die Faraday-Drehung des Fensters war um ca. 2 Größenordnungen höher als der Kerr-Effekt der Proben, so daß auch hier mit

einer Referenzprobe gearbeitet werden mußte. Die dadurch notwendigen Eingriffe in den Strahlengang bewirkten aber aufgrund des Meßverfahrens (es werden die absoluten Intensitäten gemessen!) einen nicht vertretbaren Meßfehler [32].

Aus diesen Gründen wurde in der vorliegenden Arbeit ein neues Konzept verfolgt. Das Spektrometer mitsamt der gesamten Polarisationsoptik befindet sich innerhalb eines Rezipienten, welche mit Hilfe eines Turbomolekularpumpstands auf unter $5 \cdot 10^{-5}$ hPa abgepumpt werden kann. Auf diese Weise wird es ermöglicht, daß auf den Einsatz eines Fensters verzichtet werden kann. Die Erzeugung eines Vakuums innerhalb des Spektrometers hat außerdem den Vorteil, daß die Faraday-Drehung der Raumluft ausgeschaltet wird, die ansonsten bei hohen Feldern einen nicht zu vernachlässigenden Beitrag liefert (bis zu $0,5^\circ$) [32]. Abb. 3.5 zeigt den Aufbau des Spektrometers.

Die Probe befindet sich in einem He-Durchflußkryostaten, in dem dem kupfernen Probenträger die Wärme durch das Verdampfen des flüssigen Heliums entzogen wird. Zum Befestigen der Probe wird GE-Kleber der Firma Cryophysics verwendet. Ein großes Problem besteht nun darin, daß die kalte Probe samt Probenhalter auch als Kryopumpe wirkt. Da es sich um ein optisches Experiment handelt, können Adsorbate auf der Probe die gemessenen Spektren erheblich verfälschen. Um dieses Problem zu minimieren, wurde der Probenhalter mit einem ebenfalls aus Kupfer gefertigten Kühlschild versehen.

Die Temperatur wird mit Hilfe eines Allen-Bradley-Kohlewiderstandsthermometers gemessen. Die Kalibrierkurve ist in Abb. 3.6 dargestellt.

Mit Hilfe des verwendeten Kryostaten lassen sich Temperaturen von bis zu 10 K erreichen. Dabei muß allerdings beachtet werden, daß die Temperatur im Innern des massiven Kupfer-Probenträgers gemessen wird. Diese muß aufgrund der begrenzten Wärmeleitfähigkeit des Klebers und der Erwärmung der Probe durch die auftreffenden Photonen nicht zwangsläufig mit der Temperatur der Probe übereinstimmen. Eine Abschätzung der Differenz zwischen gemessener und tatsächlich auf der Probe erreichter Temperatur kann durch den Vergleich der Breite von Kerr- und SQUID(*superconducting quantum interference device*)-Hysteresekurven gemacht werden, da die Form der Hysteresekurve oftmals stark abhängig ist von der Temperatur. Ein solcher Vergleich ist in Abb. 3.7 gegeben und zeigt, daß die Temperatur auf dieser Probe ca. 5 K höher ist als am Ort des Widerstandsthermometers. Zu diesen Betrachtungen sollte allerdings angemerkt werden, daß mit dem SQUID die Magnetisierung des Volumenmaterials bestimmt wird, während die Magnetooptik eine stärker oberflächensensitive Untersuchungsmethode ist.

Der Biegeschwinger besteht aus 2 Doppel-Glan-Taylor-Polarisationsprismen, die aneinandergeklebt sind und deren Polarisationsrichtungen um 90° gegeneinander verdreht sind. Diese Prismenanordnung ist an einer Bronze-Beryllium-Blattfeder befestigt, die wiederum mit 2 Piezo-Keramiken bestückt ist. Ein Piezoelement dient zum Antrieb der Feder über eine periodische Hochspannung ($U_{\text{Scheitel}} \approx 250$ V), während durch die andere Piezokeramik eine Spannung an die Biegeschwingersteuerung zurückgegeben wird, die über eine Rückkopplung zur Stabilisierung der Schwingerfrequenz führt. Die Resonanzfrequenz des Biegeschwingers ist durch seine Geometrie und die schwingende Masse festgelegt und beträgt in der benutzten Anordnung etwa 10 Hz. Die Ansteuerung des Biegeschwingers entstammt einer älteren Anlage [32] und mußte für den Einsatz in dieser Apparatur nur geringfügig modifiziert werden.

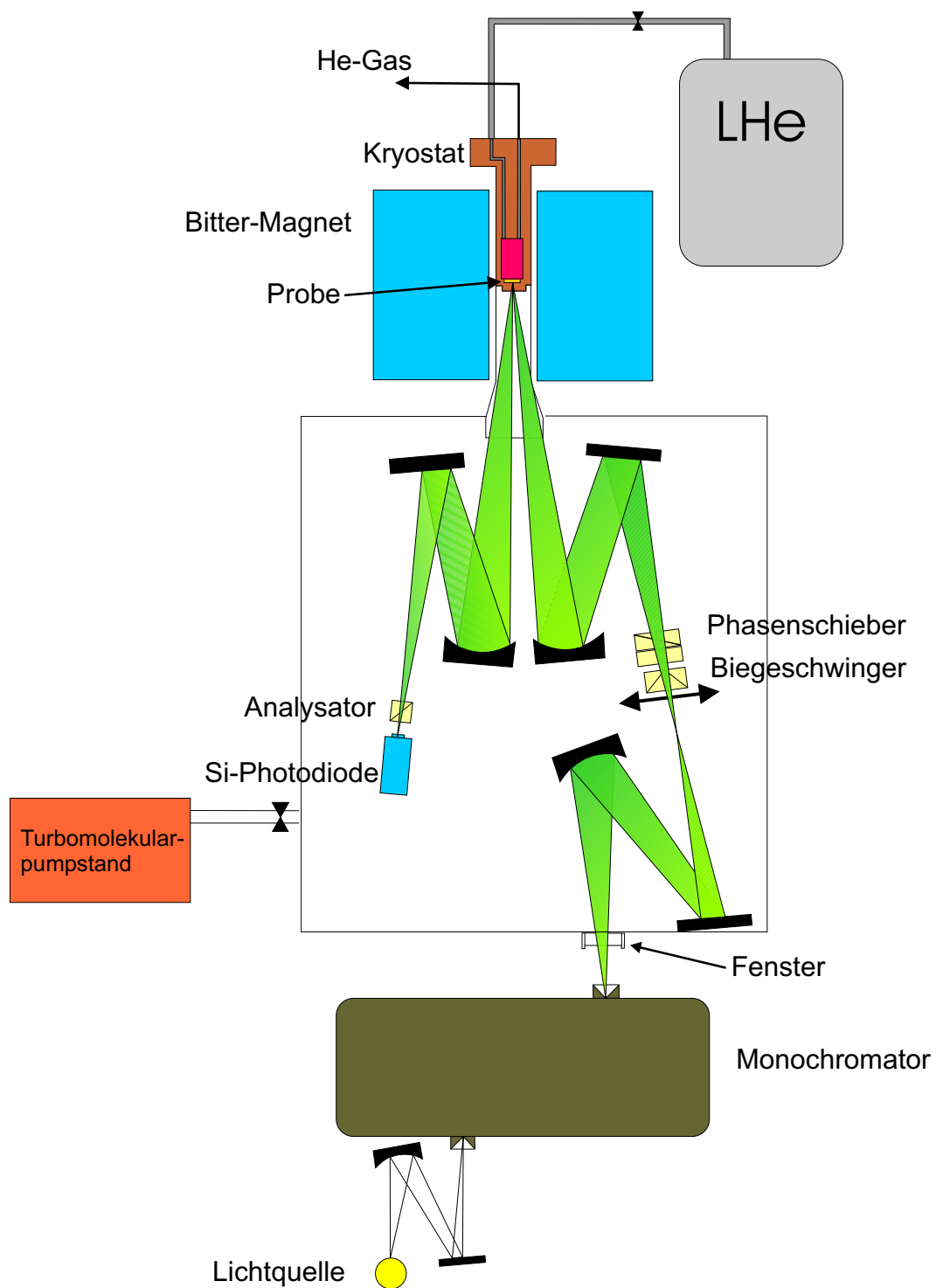


Abb. 3.5: Aufbau des Kerr-Spektrometers in der Hochmagnetfeldanlage. Für die Messung von Θ_K muß der Soleil-Babinet-Phasenschieber, bei der Bestimmung von η_K dagegen der Analysator aus dem Strahlengang entfernt werden.

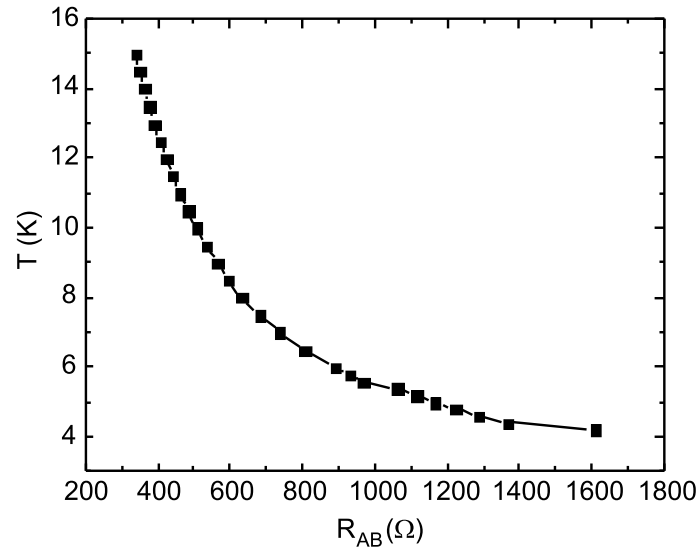


Abb. 3.6: Kalibrierkurve des Allen-Bradley-Widerstandsthermometers

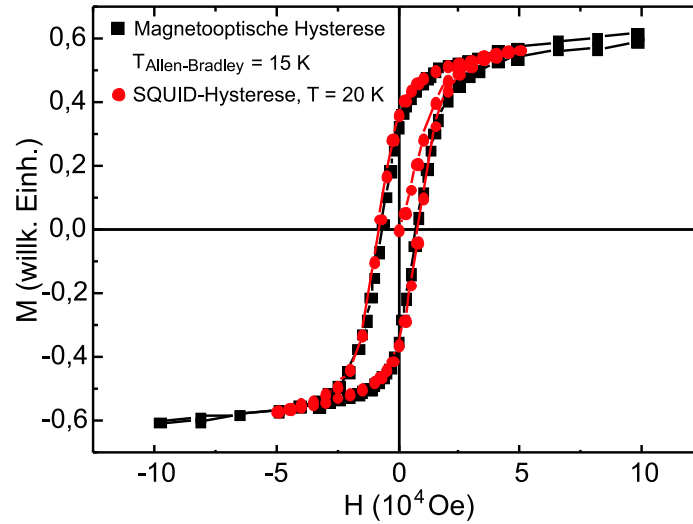


Abb. 3.7: Vergleich von Hysteresekurven an einer $U_{0,55}La_{0,45}S$ -Probe. Diese Kurven wurden mit dem HMFA-Kerrspektrometer bzw. dem SQUID-Magnetometer bei unterschiedlichen nominellen Temperaturen aufgenommen und sind zum besseren Vergleich auf dieselbe Sättigungsmagnetisierung normiert.

3.2 Nullabgleich-Kerrspektrometer

Das in Kap. 3.1.2 beschriebene Kerr-Spektrometer besitzt unter anderem den Nachteil, daß das Ergebnis der Messung von direkt gemessenen, absoluten Intensitäten abhängig ist. In diesem Absatz wird ein Verfahren vorgestellt, das dieses Problem umgeht, indem direkt der Drehwinkel durch die Messung gegenüber einer Referenz bestimmt wird. Diese Methode arbeitet mit der Modulation der Polarisationsrichtung des reflektierten Lichts.

Die mathematische Behandlung von polarisiertem Licht kann unter anderem im Rahmen des *Jones-Formalismus* (z. B. [30]) geschehen, wobei der Polarisationszustand des Lichts durch einen zweizeiligen Vektor dargestellt wird. Für (in x -Richtung) linear polarisiertes Licht bekommt man die folgende Darstellung:

$$\vec{E} = E_0 \begin{pmatrix} 1 \\ 0 \end{pmatrix}, \quad (3.11)$$

während elliptische Polarisation durch die Einführung von komplexen Vektorelementen beschrieben wird. Beispielsweise wird links- bzw. rechtszirkular polarisiertes Licht folgendermaßen ausgedrückt:

$$\vec{E} = E_0 \begin{pmatrix} 1 \\ \pm i \end{pmatrix}. \quad (3.12)$$

Das Minuszeichen steht bei LZP, das Pluszeichen dagegen bei RZP. Entsprechend kann die Änderung des Polarisationszustandes nach dem Durchgang (bzw. der Reflexion) durch ein optisch aktives Bauteil durch *Jones-Matrizen*, komplexe 2×2 -Matrizen dargestellt werden, wobei sich der resultierende Polarisationszustand durch Multiplikation des Vektors der einfallenden Polarisation mit der Jones-Matrix ergibt.

Dieses Kerrspektrometer arbeitet mit einem Nullabgleichverfahren, bei dem die Drehwinkel und Elliptizitäten direkt gemessen werden können. Dabei ist das einfallende Licht linear polarisiert und die Polarisationsrichtung des von der Probe reflektierten Lichts wird mit Hilfe einer Faraday-Zelle moduliert. Diese besteht aus einer wassergekühlten Spule, in die ein Glasstab eingebracht wird. Ein durch die Spule geschickter Wechselstrom erzeugt ein sich periodisch änderndes Magnetfeld, das den Glasstab durchsetzt. Durch den Faraday-Effekt des Glases wird somit eine Modulation der Polarisationsrichtung des an der Probe reflektierten Lichts erreicht.

Die Jones-Matrix eines periodisch modulierenden Faraday-Rotators hat die folgende Form:

$$F = \begin{pmatrix} \cos \Theta_F & -\sin \Theta_F \\ \sin \Theta_F & \cos \Theta_F \end{pmatrix}, \quad (3.13)$$

wobei die Modulation der Faraday-Drehung gegeben ist durch:

$$\Theta_F(t) = V l B_0 \sin \omega t. \quad (3.14)$$

Hierbei ist l die Länge und V die Verdet-Konstante des Glasstabes, mit der die spezifische Faraday-Drehung angegeben wird. B_0 bezeichnet den Scheitelwert des durch die Spule

erzeugten Wechselfeldes. Zusammen mit den Jones-Matrizen der magnetooptisch aktiven Probe (P) und des Analysators (A):

$$P = \frac{\tilde{\rho}_+ + \tilde{\rho}_-}{2} \begin{pmatrix} 1 & -i\frac{\tilde{\rho}_+ - \tilde{\rho}_-}{\tilde{\rho}_+ + \tilde{\rho}_-} \\ -i\frac{\tilde{\rho}_+ - \tilde{\rho}_-}{\tilde{\rho}_+ + \tilde{\rho}_-} & -1 \end{pmatrix} \quad (3.15)$$

$$\approx \tilde{\rho} \begin{pmatrix} 1 & -(\Theta_K - i\eta_K) \\ -(\Theta_K - i\eta_K) & -1 \end{pmatrix} \quad (3.16)$$

$$A = \begin{pmatrix} \cos^2 \alpha & \sin \alpha \cos \alpha \\ \sin \alpha \cos \alpha & \sin^2 \alpha \end{pmatrix} \quad (3.17)$$

(α : Analysatorwinkel) läßt sich nun der Polarisationszustand des Lichtes nach dem Durchgang durch den Analysator folgendermaßen berechnen:

$$\begin{pmatrix} E_{rx} \\ E_{ry} \end{pmatrix} = A \cdot F \cdot P \cdot \begin{pmatrix} E_0 \\ 0 \end{pmatrix}. \quad (3.18)$$

Die Intensität des Lichts am Detektor ist jetzt durch das Ausmultiplizieren des Ausdruckes 3.18 zu ermitteln. Die genaue Rechnung hierzu ist z. B. in [8] nachzulesen. Hierbei wird die Tatsache ausgenutzt, daß der Lock-in-Verstärker, mit dem das Detektorsignal verarbeitet wird, nur diejenigen Signalanteile verstärkt, die die Modulationsfrequenz der Faraday-Zelle besitzen. Unter der Annahme kleiner Winkel Θ_K, η_K ergibt sich als Ergebnis für die Abhängigkeit der Intensität vom Analysatorwinkel α :

$$I \sim |\sin(2(\alpha - \Theta_K))|. \quad (3.19)$$

Wenn der Analysatorwinkel um kleine Winkel variiert wird, ist das Lock-in-Signal also proportional zum Betrag einer Sinusfunktion, die in der Nähe des Minimums durch zwei Geraden angenähert werden kann. Eine solche „V-Kurve“ ist in Abb. 3.8 gezeigt. Diese Methode besitzt eine hervorragende Präzision von bis zu $0,005^\circ$, obwohl der Modulationshub, d. h. die maximale Faraday-Drehung des verwendeten Glases im Wechselfeld, nur einige Grad beträgt.

Durch einen linearen Fit an die beiden Schenkel der V-Kurve wird derjenige Analysatorwinkel ermittelt, bei dem das Signal minimal wird. Die Kerr-Drehung ergibt sich dann einfach aus der Differenz der Winkel für Probe und Referenzspiegel. Magnetfeldunabhängige Artefakte wie z. B. Spannungsdoppelbrechung können eliminiert werden, indem die Drehung für beide Magnetfeldrichtungen gemessen wird.

Da dieses Verfahren nur die Ermittlung der Polarisationsrichtung erlaubt, muß für die Messung der Kerr-Elliptizität zu einem Trick gegriffen werden. Man nutzt das Prinzip von *Senarmont* aus, bei dem die Elliptizitätsbestimmung in eine Drehwinkelmessung transformiert wird [35]. Das reflektierte, elliptisch polarisierte Licht durchläuft vor der Faraday-Zelle einen Soleil-Babinet-Kompensator, einen einstellbaren Phasenschieber. Dessen optische Achse wird parallel zur großen Hauptachse der Polarisationsellipse eingestellt. Bei einer Phasenverschiebung von $\lambda/4$ wird die elliptische Polarisation in eine lineare umgewandelt, wobei die Polarisationsrichtung zusätzlich um η_K gedreht ist. Auf diese Art und Weise ist es dann möglich, η_K nach demselben Verfahren zu bestimmen, mit dem bereits

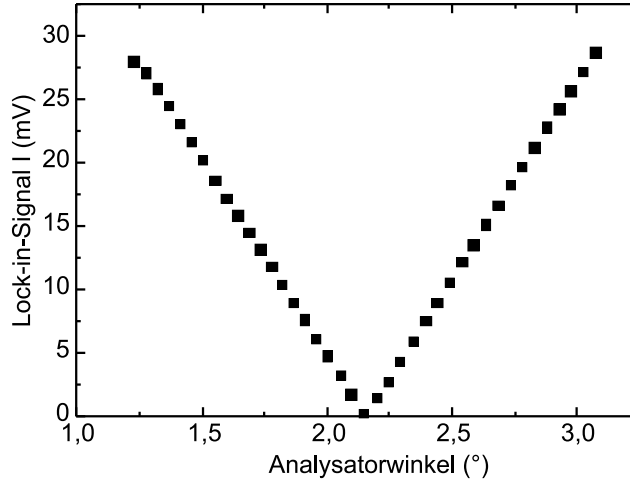


Abb. 3.8: Lock-in-Signal in Abhängigkeit von der Analysatorstellung bei Verwendung des Verfahrens der Polarisationsmodulation mit der Faraday-Zelle.

Θ_K gemessen wurde. Eine ausführliche Rechnung wird im Anhang A geliefert.

Für die Messungen an den Übergangsmetall-Verbindungen stand ein Nullabgleich-Kerrspektrometer zur Verfügung, das Messungen bei Raumtemperatur erlaubt. Das äußere Magnetfeld von bis zu 2,5 T wird von einem wassergekühlten Elektromagneten geliefert. Der Aufbau dieser Anlage erfolgte im Rahmen von Diplom- und Staatsexamensarbeiten [33, 34].

Eine schematische Darstellung der Apparatur ist in Abb. 3.9 gezeigt. Das monochromatische Licht wird linear polarisiert und auf die Probe abgebildet. Das reflektierte Licht passiert zunächst die Faraday-Zelle (bzw. im Fall der Elliptizitätsmessung auch den Soleil-Babinet-Kompensator), wird dann auf den Analysator fokussiert und schließlich zum Detektor (bei Lichtwellenlängen oberhalb 500 nm eine Siliziumdiode bzw. unterhalb 500 nm ein Photomultiplier) umgelenkt. Die Probe befindet sich zusammen mit einem Referenzspiegel (mit $\Theta_K, \eta_K \approx 0$) auf einem Linearverstelltisch, so daß Probe und Spiegel abwechselnd in den Strahlengang gebracht werden können.

Die Modulationsfrequenz f der Faraday-Zelle wird direkt vom internen Frequenzgenerator des Lock-in-Verstärkers vorgegeben. Über einen HiFi-Verstärker wird mit diesem Signal die Faraday-Zelle betrieben. Der Modulationshub hängt sowohl von f als auch von der Verdet-Konstante des in die Zelle eingeführten Glasstabes ab und liegt typischerweise bei einigen Grad. Als Modulationsfrequenz wurde ca. 80 Hertz gewählt, da mit größerer Frequenz eine Verminderung des Hubs, mit geringerer Frequenz dagegen eine zu starke Erwärmung der Spule auftritt. Der bei geringen Photonenenergien verwendete Schwerflintstab (SF 57) besitzt einen recht hohen Brechungsindex und somit auch eine hinreichend hohe Verdet-Konstante, ist aber oberhalb $\hbar\omega = 3,5$ eV nicht mehr transparent. Aus

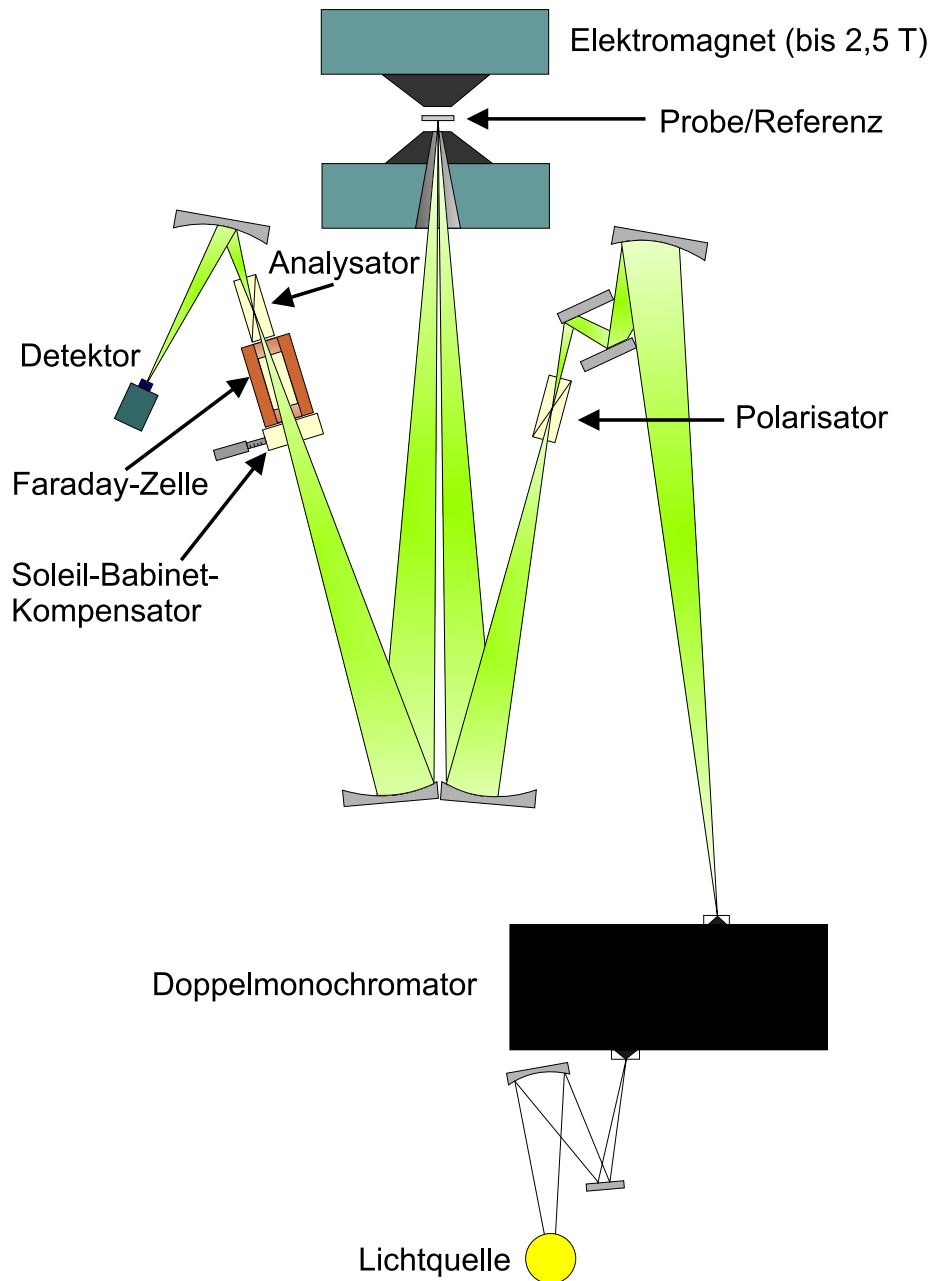


Abb. 3.9: Mit dem Nullabgleich-Kerr-Spektrometer können hochpräzise magnetooptische Spektren bei Raumtemperatur aufgenommen werden. Der Soleil-Babinet-Kompensator wird bei der Rotationsmessung entfernt.

diesem Grund wird für hohe Photonenenergien stattdessen ein Suprasil-Quarzglasstab benutzt.

Vor dem Beginn der Messung eines magnetooptischen Spektrums wird zunächst das Magnetfeld auf einen Wert eingestellt, bei dem sich die Probe bereits in der Sättigung befindet. Dann wird die gewünschte Wellenlänge am Monochromator eingestellt und danach mit Hilfe eines Linearverstelltisches abwechselnd die Probe und die Referenz in den Strahlengang eingeführt und jeweils eine „V-Kurve“ (siehe Abb. 3.8) aufgenommen. Der Kerrwinkel wird durch Differenzbildung der Positionen des Minimums der V-Kurven für Probe und Referenzspiegel berechnet. Diese Prozedur wird für die anderen Wellenlängen wiederholt. Da in dem auf diese Weise gemessenen Kerr-Spektrum noch magnetfeldunabhängige Artefakte enthalten sein können, wird ein weiteres Spektrum bei umgekehrter Feldrichtung aufgenommen. Die korrekte Kerr-Rotation bekommt man dann durch die Differenzbildung dieser beiden Spektren.

3.3 Bestimmung der optischen Eigenschaften mittels Ellipsometrie

Die Ellipsometrie ist ein Meßverfahren, mit dessen Hilfe sowohl Real- als auch Imaginärteil der (diagonalen) dielektrischen Funktion ermittelt werden kann. Das Meßprinzip beruht auf der Veränderung des Polarisationszustandes einer unter schräger Inzidenz einfallenden Lichtwelle nach der Reflexion an der Probe, da nach den Fresnel'schen Formeln [29] das Licht senkrechter und paralleler Polarisation unterschiedlich stark reflektiert wird.

Daher ist ein Lichtstrahl, der sowohl eine parallel als auch eine senkrecht zur Einfallsebene polarisierte Komponente besitzt, nach der Reflexion an der Probe im allgemeinsten Fall ($k \neq 0$) elliptisch polarisiert. Die optischen Konstanten lassen sich jetzt aus der Elliptizität ϵ des reflektierten Lichts sowie dem Azimutwinkel Θ_{Azimut} , d. h. der Drehung der großen Hauptachse der Ellipse gegenüber der Ausgangspolarisation bestimmen [30].

$$\frac{\tilde{\rho}_s}{\tilde{\rho}_p} = \frac{(\cot \Theta_{Azimut} - i\epsilon)(\tan P + i\gamma_p)}{(1 + i\epsilon \cot \Theta_{Azimut})(1 - \gamma_p \tan P)}. \quad (3.20)$$

Hierbei ist $\tilde{\rho}_s/\tilde{\rho}_p$ das *komplexe Reflexionsverhältnis* aus den Fresnelschen Reflexionskoeffizienten für senkrecht (s) und parallel (p) zur Einfallsebene polarisiertes Licht. P ist der vorgegebene Polarisatorwinkel und γ_p beschreibt die Nichtidealität des Polarisators [31]. Über den Einfallswinkel Φ_0 kann man nun den Reflexionskoeffizienten $\tilde{\rho}$ in die komplexe dielektrische Funktion umrechnen [30]:

$$\tilde{\epsilon} = \left(\frac{1 - \tilde{\rho}}{1 + \tilde{\rho}} \right)^2 \sin^2 \Phi_0 \tan^2 \Phi_0 + \sin^2 \Phi_0. \quad (3.21)$$

Für die optischen Messungen wurde ein PSA(engl. *polariser-sample-analyser*)-Ellipsometer verwendet, das während einer Diplomarbeit am IHO aufgebaut wurde [36]. Der schematische Aufbau ist in Abb. 3.10 dargestellt. Das monochromatische Licht wird schräg zur Einfallsebene polarisiert und fällt unter einem Einfallswinkel von typischerweise etwa 75° auf die Probe. Ein großer Einfallswinkel bietet sich an, da dann der Unterschied zwischen

den Reflexionskoeffizienten \tilde{r}_s und \tilde{r}_p groß und die Empfindlichkeit der Messung optimal ist. Der Polarisationszustand des reflektierten Lichtes wird dann mit einem rotierenden Analysator ausgemessen, wobei die Intensität in 5° -Schritten des Analysators aufgenommen wird. Die jeweilige Winkelposition wird dem Meßrechner über einen Winkeldekoder mitgeteilt.

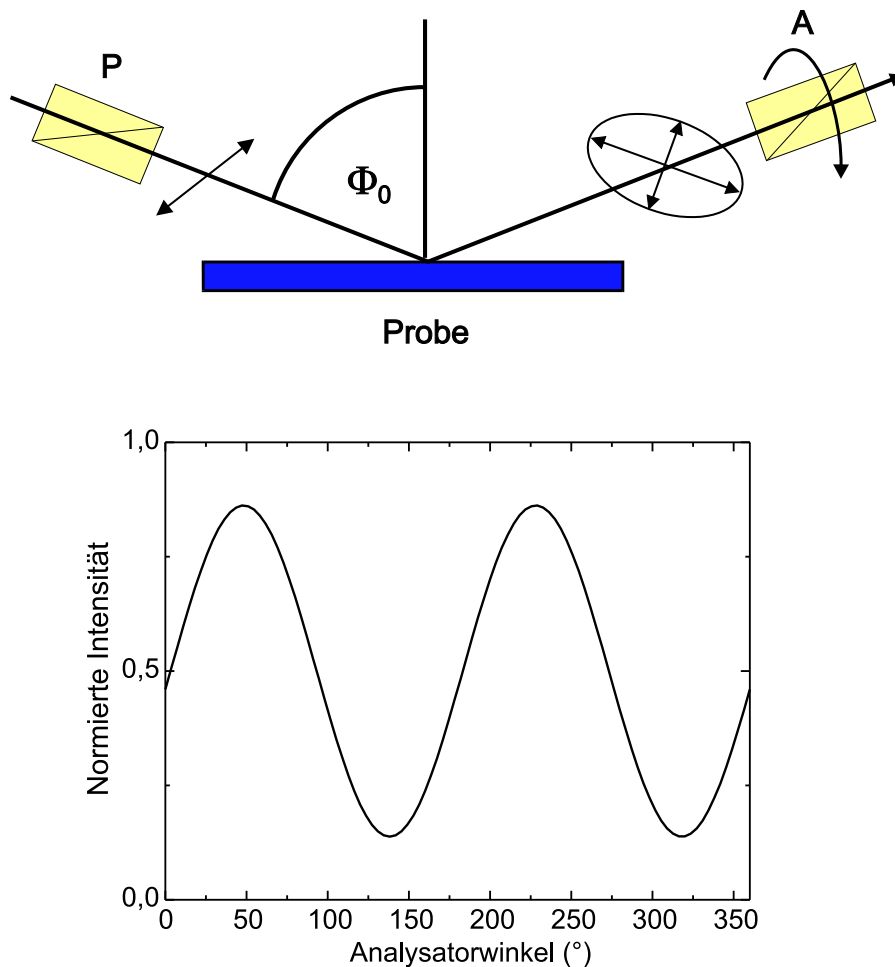


Abb. 3.10: Schematische Darstellung des für die optischen Messungen verwendeten PSA-Ellipsometers. Der Analysator rotiert mit einer konstanten Frequenz, so daß die Parameter der Polarisationsellipse des reflektierten Lichts aus der winkelabhängigen Intensität (unten, idealisiert dargestellt) ermittelt werden können.

Im Idealfall sollte die Intensität in Abhängigkeit vom Analysatorwinkel α nur Anteile besitzen, die proportional zu $\cos(2\alpha)$ oder $\sin(2\alpha)$ sind (eine mechanische Drehung des

Analysators entspricht zwei optischen Zyklen, vgl. Abb. 3.10):

$$I(\alpha) = I_0(1 + a_2 \cdot \cos(2\alpha) + b_2 \cdot \sin(2\alpha)). \quad (3.22)$$

Aus dem Signal werden die Fourierkoeffizienten a_2 und b_2 bestimmt, die zur Berechnung der Elliptizität ϵ und des Azimutwinkels Θ_{Azimut} verwendet werden können. Der Rechengang dazu ist in [37] beschrieben.

Vor einer Messung müssen noch die Polarisator- bzw. Analysatornullstellung ermittelt werden. Hierzu wird ein Goldspiegel in den Strahlengang eingesetzt und der Polarisatorwinkel in der Nähe senkrecht zur Einfallsebene liegender Polarisation in kleinen Schritten variiert. Man erhält eine parabolische Abhängigkeit des *Residuums* $R = 1 - a_2^2 - b_2^2$ vom Polarisatorwinkel [37, 38]. Aus dieser Parabel läßt sich die Polarisatornullstellung bestimmen. Die Analysatornullstellung ist danach einfach durch Ausmessen des Polarisationszustandes des Lichts ohne Probe zu ermitteln.

4. Die untersuchten Materialsysteme

4.1 *Magnetisch verdünnte Uranchalkogenide*

4.1.1 *Eigenschaften von Uranmonochalkogeniden*

Die Monochalkogenide (Verbindungen mit Elementen der 6. Hauptgruppe) der Seltenen Erden und der Aktiniden besitzen vielfältige magnetische und magnetooptische Eigenschaften. So gehören z. B. die Europiummonochalkogenide zur Klasse der magnetisch ordnenden Halbleiter, wobei sie geradezu als ein Modellsystem für den Heisenberg-Austausch anzusehen sind. Die magnetischen Eigenschaften dieser Verbindungen sind bestimmt durch die Größe der Austauschintegrale J_1 , J_2 für den Austausch zwischen den nächsten bzw. übernächsten Nachbarn. So ist EuS aufgrund der Dominanz des positiven J_1 gegenüber dem negativen J_2 ein Ferromagnet mit einer Curietemperatur von 16,5 K [39]. Beim EuSe dagegen besitzen J_1 und J_2 vergleichbare Absolutwerte bei entgegengesetztem Vorzeichen, was zu einem sehr komplexen magnetischen Phasendiagramm führt [40, 41]. Die Europiumchalkogenide besitzen stark strukturierte magnetooptische Spektren, aus denen sich unter anderem die Größe der Kristallfeldaufspaltung der $5d$ -Endzustände bestimmen läßt. Die in den Spektren auftretende Feinstruktur kann im Rahmen eines Termschemas interpretiert werden und ist auf die Aufspaltung des $5d4f^6$ -Endzustandes im Magnetfeld zurückzuführen. Die außerordentliche Größe des Nichtdiagonalelements der optischen Leitfähigkeit kann erklärt werden durch das Zusammenspiel von vollständiger Spinpolarisation des Anfangszustandes bei Vorhandensein des größtmöglichen Spinmoments und einer hinreichenden Spin-Bahn-Aufspaltung des Endzustandes (siehe dazu z. B. [42, 43]).

Diese Untersuchungen waren der Ausgangspunkt dafür, sich auch mit anderen magnetischen Verbindungen der Seltenen Erden bzw. der Aktiniden zu beschäftigen. Von den Aktinidverbindungen bieten sich insbesondere die Uranchalkogenide für Untersuchungen an. Zum einen sind die anderen Aktinide in der Regel nur in geringen Dosen verfügbar, der wichtigere Grund ist jedoch in der starken Radioaktivität und/oder Toxizität dieser $5f$ -Elemente zu suchen. Daher ist eine systematische Untersuchung bezüglich der Variation der f -Elektronenanzahl wie bei den Selten-Erd-Verbindungen hier nicht ohne weiteres möglich. In der vorliegenden Arbeit wurden nur Proben untersucht, die geringe Mengen (< 1 g) abgereicherten¹ Urans enthielten.

Die am intensivsten untersuchten Uranmonochalkogenide sind US, USe, und UTe. Die

¹ Natürlich vorkommendes Uran besteht zu 99,275% aus ^{238}U , zu 0,72 % aus ^{235}U und zu 0,005 % aus ^{234}U (unter Vernachlässigung von Spurenelementen anderer Uranisotope). Im abgereicherten Uran sind die Isotope ^{235}U auf 0,2 % reduziert und ^{234}U weitgehend entfernt. Dadurch erreicht man eine

Herstellung von Uranmonooxid gestaltet sich schwierig, da sich anstatt dessen UO_2 bildet. Das Chalkogen mit der höchsten Ordnungszahl, Polonium, besitzt schließlich nur kurzlebige radioaktive Isotope, so daß eine stabile Verbindung mit diesem Material nicht möglich ist [45]. Alle betrachteten Uranmonochalkogenide kristallisieren in der kubisch flächenzentrierten NaCl-Struktur (Abb. 4.1) und ordnen ferromagnetisch, wobei die Curietemperaturen deutlich höher liegen als in Seltenerdmonochalkogeniden.

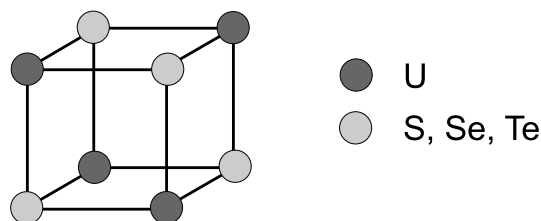


Abb. 4.1: Uranmonochalkogenide kristallisieren in der kubisch flächenzentrierten NaCl-Struktur: Schematische Darstellung der Einheitszelle.

Die Materialien besitzen trotz ihrer kubischen Kristallstruktur eine ausgeprägte magnetische Anisotropie in $[111]$ -Richtung [50], wobei die Anisotropiekonstante K_1 von US einen Wert von $2 \cdot 10^7 \text{ J/m}^3$ [46] annimmt, was um mehr als eine Größenordnung oberhalb der Werte für Übergangsmetallverbindungen liegt (z. B. $K_1 = 1 \cdot 10^6 \text{ J/m}^3$ bei MnBi-Filmen [47]). Dieser Wert für K_1 ist der höchste, der bislang für ein kubisches Material gefunden wurde. Die Gitterkonstanten von Einkristallen nehmen zu den Verbindungen mit schwereren Chalkogenen hin zu (siehe Tabelle 4.1).

Verbindung	a [Å]	T_C [K]	Moment [μ_B /U-Atom]
US	5,489	178	1,7
USE	5,75	160	2,0
UTe	6,155	104	2,25

Tab. 4.1: Gitterkonstante, Curietemperatur und geordnetes magnetisches Moment von verschiedenen Uranmonochalkogeniden ([48],[49],[50])

Wenn man davon ausgeht, daß in den Uranmonochalkogeniden die magnetischen Eigenschaften durch dreiwertige Uranionen getragen werden, ergibt sich unter der Annahme von Russell-Saunders-Kopplung ein geordnetes magnetisches Moment von $gJ = 3,41 \mu_B$ pro Uranatom. Für alle drei Uranmonochalkogenide liegen die gemessenen Momente deutlich unter diesem theoretischen Wert. Dies ist ein Hinweis darauf, daß dieses Modell mit komplett lokalisierten magnetischen Momenten bei den UX-Verbindungen zumindest einer Modifizierung bedarf [51].

Während Übergangsmetalle und die meisten Übergangsmetallverbindungen mit teilweise

Verringerung der radioaktiven Strahlenbelastung um ca. 20 %, weil die Halbwertszeit von ^{235}U ca. $7 \cdot 10^8$ Jahre und von ^{234}U nur ca. $2,5 \cdot 10^5$ Jahre beträgt und damit erheblich geringer ist als die Halbwertszeit von ^{238}U ($4,5 \cdot 10^9$ Jahre) [44].

gefüllten d -Elektronenschalen *itineranten* (Band-) Magnetismus zeigen, gilt dies für f -Elektronen-Systeme (Seltenerdmetall- oder Aktinidverbindungen) im allgemeinen nicht mehr. Der Grund liegt in der räumlichen Ausdehnung der jeweiligen Orbitale: Die Aufenthaltswahrscheinlichkeit der d -Elektronen ist maximal in recht großer Entfernung vom Atomkern. Somit gibt es eine erhebliche Überlappung der d -Zustände benachbarter Atome. Im Unterschied dazu befinden sich die f -Elektronen nahe beim Kern, wodurch es nahezu keine Wechselwirkung mit den f -Orbitalen anderer Atome gibt, d. h. jedes f -Elektron kann als *lokalisiert* betrachtet werden. Diese Lokalisierung ist für $5f$ -Systeme allerdings geringer ausgeprägt als für $4f$ -Systeme aufgrund einer größeren Ausdehnung der Orbitale (siehe auch Abb. 4.2).

Aus diesen Überlegungen ergibt sich auch, daß der Grad der Lokalisierung der $5f$ -Elektronen für die Uranmonochalkogenide unterschiedlich ist. Durch den größeren Gitterabstand in UTe sind hier die f -Elektronen als weitgehend lokalisiert anzunehmen, was durch Photoemissionsmessungen [52] gezeigt wurde, während US eher Anzeichen von itinerantem Magnetismus zeigt [53, 54].

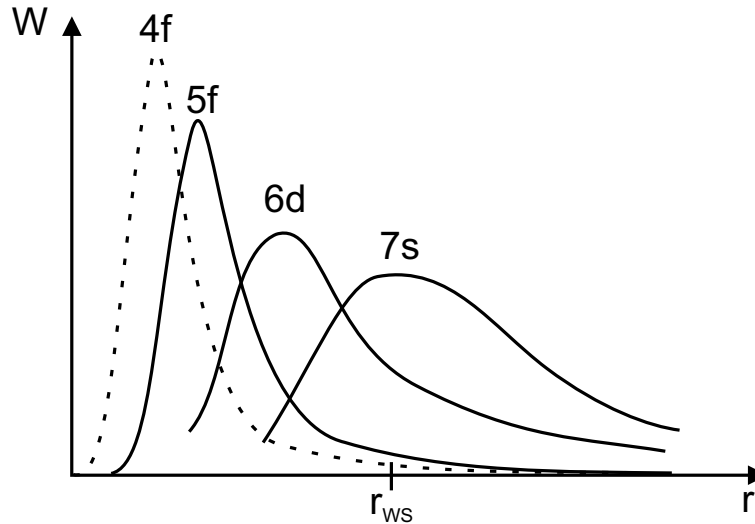


Abb. 4.2: Vereinfachte Darstellung des Radialanteils der Wellenfunktion für verschiedene Orbitale nach [55]. Der Grad der Lokalisierung ist für die f -Elektronen deutlich erhöht gegenüber den d - oder s -Elektronen (d. h. geringer Überlapp zwischen den f -Wellenfunktionen benachbarter Atome). r_{WS} bedeutet Wigner-Seitz-Radius.

4.1.2 $U_xLa_{1-x}S$ -Verbindungen

Die Motivation, Mischverbindungen zwischen US und LaS zu untersuchen, liegt darin, daß der Überlapp der f -Wellenfunktionen durch eine Abnahme der Zahl nächster Uran-Nachbarn verringert wird. Man spricht von einer *magnetischen Verdünnung* des Uransulfids. Weiterhin wird durch die Beimischung von Lanthan die Gitterkonstante der Verbindung vergrößert. Auch dadurch erwartet man eine Zunahme der Lokalisierung der

5*f*-Elektronen des Urans. Untersuchungen, die sich mit diesem Aspekt beschäftigen, wurden bereits an dem verwandten Materialsystem (U,La)Te gemacht, wobei hier Lanthan teilweise durch Yttrium ersetzt werden mußte, da ansonsten bei mittleren Konzentrationen eine Phasentrennung auftrat. Für $\text{U}_{0,2}(\text{La}_{0,15}\text{Y}_{0,85})_{0,8}\text{Te}$ konnte mit Transport- und Suszeptibilitätsmessungen eine Zunahme der Lokalisierung gegenüber reinem UTe gezeigt werden [56].

Die einkristallinen $\text{U}_x\text{La}_{1-x}\text{S}$ -Proben wurden von O. Vogt und K. Mattenberger an der ETH Zürich hergestellt. Als Ausgangsmaterialien dienten hierbei US und LaS, die zunächst zu Pulver gemahlen, zu Pellets gepreßt und dann in einem Wolframtiegel eingeschlossen werden. Diese Pellets werden dann einige Wochen lang bei Temperaturen knapp unterhalb des Schmelzpunktes getempert. Nach dem Heizen haben sich in dem Tiegel dann einige Einkristalle gebildet, wobei der Kristallisationsmechanismus noch nicht näher bekannt ist [45]. Diese Autoren geben für die Angabe der Urankonzentration einen absoluten Fehler von etwa 1 % an.

$\text{U}_x\text{La}_{1-x}\text{S}$ kristallisiert, ebenso wie US und LaS, in NaCl-Struktur, mit statistischer Verteilung der Uran- bzw. Lanthanatome auf den Uranplätzen (siehe auch Abb. 4.1). Die Gitterkonstanten von LaS und US liegen bei 5,853 Å bzw. 5,489 Å. Für die Mischkristalle folgen die Gitterkonstanten nahezu perfekt dem Vegardschen Gesetz, das von einer linearen Interpolation der Gitterkonstanten ausgeht. Nur im mittleren Konzentrationsbereich ($x \approx 0,5$) tritt eine strukturelle Anomalie mit einer leicht erhöhten Gitterkonstante auf [57, 58].

Untersuchungen der magnetischen Suszeptibilität und der Transporteigenschaften wurden auch an einer Serie verschiedener $\text{U}_x\text{La}_{1-x}\text{S}$ -Einkristalle mit unterschiedlichem Urananteil x vorgenommen [59]. Die Ergebnisse erbrachten im Unterschied zu den Untersuchungen an verdünntem UTe, daß das einfache Modell der Zunahme der Lokalisierung der 5*f*-Elektronen mit zunehmendem Abstand der Atome bzw. zunehmender Verdünnung hier nicht ohne weiteres anwendbar ist. Vielmehr nimmt die Pauli-Suszeptibilität pro Uran-Atom (die ein Maß für die zur Leitung beitragenden *f*-Elektronen ist) im mittleren Konzentrationsbereich $0,3 < x < 0,6$ mit abnehmendem x zu. Die Ursache hierfür wird in einem teilweise lokalisierten Modell der 5*f*-Elektronen gesehen: Diese befinden sich zum einen in einem eher bandartigen Zustand direkt am Fermi-Niveau, zum anderen in einem sog. *split-off state* deutlich unterhalb von E_F . Abb. 4.3 gibt eine vereinfachte Darstellung dieser Zusammenhänge. Im erwähnten Konzentrationsbereich findet mit zunehmendem Urananteil eine Auffüllung ausschließlich dieses *split-off state* statt. Dies ergibt sich aus der Tatsache, daß die effektive Masse und die Ladungsträgerkonzentration in diesem Konzentrationsbereich konstant bleiben und somit die Pauli-Suszeptibilität pro Uranatom abnimmt. Für die anderen Konzentrationsbereiche wird dagegen auch der Zustand am Fermi-Niveau besetzt, wodurch der Anteil der lokalisierten Elektronen mit abnehmendem x zunimmt.

Eine weitere Möglichkeit, den Lokalisierungsgrad zu variieren, liegt darin, mechanischen Druck an die Proben anzulegen. Man erwartet in erster Näherung eine Kompensation des Verdünnungseffekts durch den Druck, d. h. das Verhalten der verdünnten Uransulfid-Proben sollte sich dem des reinen US annähern. Da für eine nennenswerte Veränderung

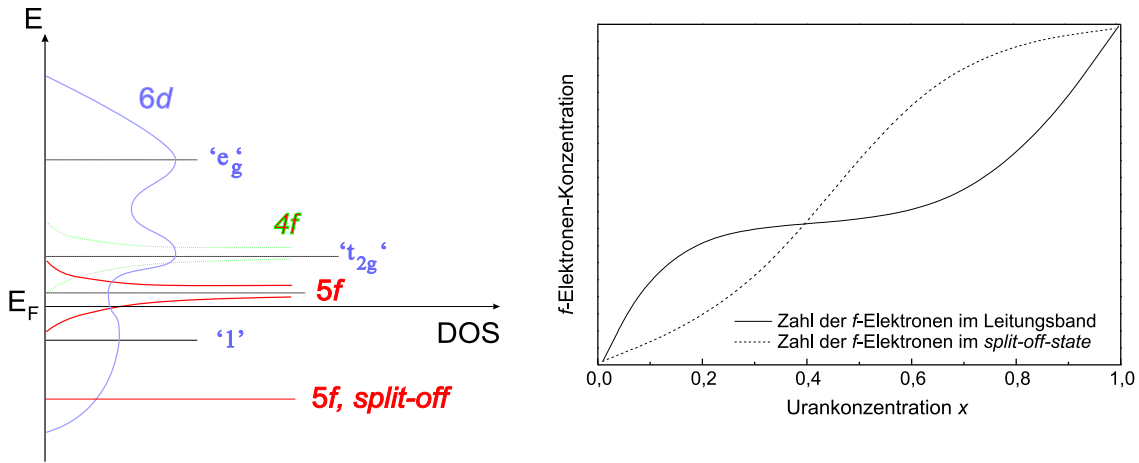


Abb. 4.3: Einfaches Modell der Zustandsdichte in $U_xLa_{1-x}S$. Dargestellt sind die kristallfeld-aufgespaltenen $6d$ -Zustände (e_g , t_{2g} , violett), das am Fermi-Niveau liegende $5f$ -Band (rot) sowie die leeren $4f$ -Zustände des Lanthans (grün). Ein Teil der $5f$ -Elektronen befindet sich in einem lokalisierten *split-off* Zustand unterhalb von E_F . Die $d-f$ -Hybridisierung bewirkt eine Abnahme der d -Zustandsdichte nahe E_F und damit ein weiteres Maximum (1) unterhalb des Fermi-niveaus. Rechts ist dargestellt, wie die unterschiedlichen $5f$ -Niveaus mit zunehmendem Urananteil aufgefüllt werden. Nach [59] und [60].

der Gitterkonstante Drücke im GPa-Bereich nötig sind, geschieht das Anlegen des Drucks mit Hilfe von Diamantdruckzellen [61]. Optische Messungen unter hohen Drücken an $U_xLa_{1-x}S$ haben, wie man es durch die Verringerung der Gitterkonstante und damit die Zunahme der Ladungsträgerkonzentration erwartet, ein mit dem Druck zunehmend metallisches Verhalten gezeigt. Eine signifikante Änderung der durch Interbandübergänge auftretenden Strukturen findet dagegen nicht statt. Dieses Ergebnis steht in Übereinstimmung mit theoretischen Vorhersagen [62], die zeigen, daß die Bandstruktur selbst bei deutlicher Änderung der Gitterkonstante nahezu unverändert bleibt. Des Weiteren ist der Übergang in eine kubisch raumzentrierte Phase für $x \leq 0,4$ bei Drücken oberhalb von 25 GPa (für LaS) bzw. 10 GPa (für $U_{0,4}La_{0,6}S$) beobachtet worden [63].

4.2 Die Systeme Mn_xPt_{1-x} und Cr_xPt_{1-x}

Die binären, intermetallischen Verbindungen M_xPt_{1-x} ($M = V, Mn, Cr, Fe, Co$) haben aufgrund ihrer magnetischen Eigenschaften großes Interesse geweckt. Insbesondere sind diese Verbindungen im Hinblick auf eine mögliche Anwendung als magnetooptisches Speichermedium interessant. Die verhältnismäßig niedrigen Herstellungskosten sowie die hervorragende chemische Stabilität der Übergangsmetall-Platin-Verbindungen sprechen

ebenfalls für eine Verwendbarkeit als Speichermedium.

Im Folgenden werden zunächst die strukturellen und magnetischen Eigenschaften von $\text{Mn}_x\text{Pt}_{1-x}$ und $\text{Cr}_x\text{Pt}_{1-x}$ dargestellt. Dazu wurden auch im Institut für Halbleiterphysik und Optik bereits umfangreiche Untersuchungen durchgeführt [47, 64]. Weiterhin soll kurz auf die Herstellung der in der vorliegenden Arbeit untersuchten Proben eingegangen werden.

4.2.1 Herstellung, strukturelle und magnetische Eigenschaften von $\text{Mn}_x\text{Pt}_{1-x}$ und $\text{Cr}_x\text{Pt}_{1-x}$

Elementares Platin kristallisiert jeweils in einem kubisch flächenzentrierten (fcc) Gitter. Die Kristallstruktur von $\text{Mn}_x\text{Pt}_{1-x}$ sowie $\text{Cr}_x\text{Pt}_{1-x}$ hängt in beiden Fällen von der Mangan- bzw. Chromkonzentration ab. Für geringe Übergangsmetallkonzentrationen ($x < 0,15$ für $\text{Mn}_x\text{Pt}_{1-x}$ bzw. $x < 0,12$ für $\text{Cr}_x\text{Pt}_{1-x}$) findet man ebenfalls die fcc-Struktur, bei der die Mn- bzw. Cr-Atome statistisch im Kristallgitter verteilt sind. Bei Erhöhung von x bildet sich eine neue Phase, die AuCu_3 - bzw. L1_2 -Struktur. Diese besteht auch aus einem kubisch flächenzentrierten Gitter, allerdings sind die verschiedenen Atomsorten nicht mehr statistisch verteilt, sondern die Platinatome besetzen vorzugsweise die Flächenplätze, die Übergangsmetallatome dagegen die Eckplätze des Gitters (siehe Abb. 4.4 a). Man spricht von einer *chemischen Ordnung* oder einer *Überstruktur* des fcc-Gitters. Die AuCu_3 -Struktur bildet sich im Konzentrationsbereich $0,15 < x < 0,38$ (für $\text{Mn}_x\text{Pt}_{1-x}$) sowie $0,12 < x < 0,55$ (für $\text{Cr}_x\text{Pt}_{1-x}$) aus. Besonders interessant ist hierbei der Fall des $\text{Mn}(\text{Cr})\text{Pt}_3$. Diese Verbindungen können nahezu vollständig chemisch geordnet hergestellt werden, während sich für andere x zwangsläufig Abweichungen von der AuCu_3 -Struktur ergeben.

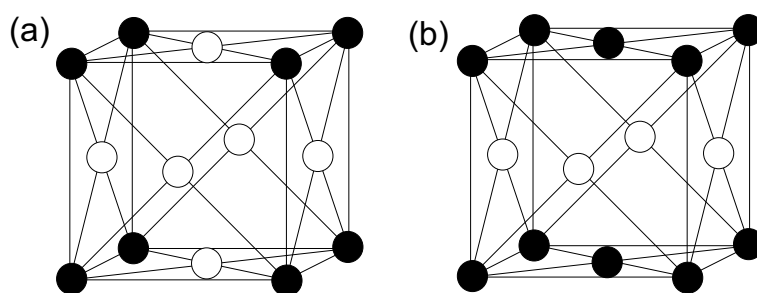


Abb. 4.4: Chemisch geordnete AuCu_3 (a) bzw. AuCu -Struktur (b). Die Platinatome sind durch weiße, die Übergangsmetallatome durch schwarze Kreise symbolisiert.

Bei weiterer Steigerung von x , d. h. im Konzentrationsbereich $0,38 < x < 0,75$ (für $\text{Mn}_x\text{Pt}_{1-x}$) bzw. $0,55 < x < 1$ (für $\text{Cr}_x\text{Pt}_{1-x}$) entsteht die ebenfalls geordnete, tetragonale AuCu bzw. L1_0 -Struktur. Hierbei bilden sich abwechselnd jeweils Lagen aus Mn(Cr)- sowie Pt-Atomen (siehe Abb. 4.4 b). Die Kristallstruktur von $\text{Mn}_x\text{Pt}_{1-x}$ im genannten Konzentrationsbereich unterscheidet sich von derjenigen des $\text{Cr}_x\text{Pt}_{1-x}$ dahingehend, daß

bei der Manganverbindung tatsächlich eine tetragonale Verzerrung des Gitters stattfindet, während das Gitter bei der Chromverbindung kubisch bleibt. „Tetragonal“ bezieht sich hier nur auf die Gittersymmetrie durch die chemische Ordnung (die Stapelfolge ist in z -Richtung anders als in x - oder y -Richtung).

Bei sehr hohen Mangankonzentrationen geht das System wieder in die fcc-Phase (γ -Mn) über mit statistischer Verteilung der verschiedenen Atomsorten auf den Gitterplätzen. Phasendiagramme der Mn_xPt_{1-x} und Cr_xPt_{1-x} -Verbindungen sind in [65] enthalten.

Die in der vorliegenden Arbeit untersuchten $Mn(Cr)_xPt_{1-x}$ -Proben wurden am Institut für Halbleiterphysik und Optik im Ultrahochvakuum mittels Molekularstrahlepitaxie (engl. *molecular beam epitaxy*, MBE) hergestellt. Als Substratmaterial wurde vorzugsweise Strontiumtitanat ($SrTiO_3$) verwendet, da es eine geringe Gitterfehlانpassung zu $MnPt_3$ bzw. $CrPt_3$ besitzt und somit Gitterfehler durch Relaxation des Films sowie eine tetragonale Verzerrung durch Verspannungen minimiert werden können. Außerdem wurden polykristalline Filme auf Quarzsubstraten hergestellt.

Die Morphologie während des Kristallwachstums wurde dabei durch Reflexions-Elektronenbeugung (*reflection high energy electron diffraction*, RHEED) kontrolliert. Die RHEED-Bilder geben Aufschluß über die mikroskopische Rauigkeit der Filme während des Wachstums². Darüber hinaus ist der Grad der chemischen Ordnung an der Stärke des Überstrukturreflexes ermittelbar. Zwei typische RHEED-Patterns sind in Abb. 4.5 dargestellt. Die Schichtdicke wurde über die Verschiebung der Resonanzfrequenz von einem Schwingquarz bestimmt.

Weitergehende Informationen zum MBE-Wachstum sowie zur RHEED-Charakterisierung der $Mn(Cr)_xPt_{1-x}$ -Proben finden sich in [64]. Dort und in [66] finden sich auch weitere Details zur MBE-Anlage.

Ex-situ wurden die Proben mittels SQUID-Magnetometrie auf ihre magnetischen Eigenschaften untersucht (s. u.). Außerdem wurden manche Proben mit Röntgenbeugung bzw. mit Rasterkraftmikroskopie charakterisiert. Der Schwerpunkt wurde hierbei auf Chrom- und Mangankonzentrationen nahe $x = 0,25$ gelegt, d. h. auf Proben mit der $AuCu_3$ -Struktur. Mn_xPt_{1-x} ordnet für $0,15 < x < 0,38$ ferromagnetisch, wobei die Sättigungsmagnetisierung stark von der Konzentration abhängt und bei $x = 0,25$ maximal wird [67]. Hierfür gibt es eine einfache Erklärung: Sind die Mn-Atome allesamt auf den Eckplätzen der Einheitszelle angeordnet, ist der Abstand zwischen nächsten Mn-Nachbarn gerade so, daß das Austauschintegral J ein positives Vorzeichen annimmt. Die Folge davon ist eine ferromagnetische Ordnung der Mn-Atome. Zusätzlich wird noch ein kleines magnetisches Moment in die Pt-Atome induziert. Die magnetischen Momente in *bulk*- $MnPt_3$ wurden mittels Neutronenstreuung zu $3,68 \mu_B$ pro Mn-Atom und $0,12 \mu_B$ pro Pt-Atom ermittelt [68]. Für andere Konzentrationen sinkt die Gesamtmagnetisierung je stärker, desto mehr die Konzentration von $x = 0,25$ abweicht. Für höhere x befinden sich die Mn-Atome zwangsläufig auch auf Flächenplätzen. Da diese zu ihren Nachbarn auf den Eckplätzen einen geringeren Abstand haben, bekommt das Austauschintegral J zwischen diesen Atomen ein negatives Vorzeichen. Abb. 4.6 gibt eine bildliche Darstellung dieser Zusammenhänge.

² Dagegen kann über die *makroskopische* Rauigkeit mit RHEED keine Aussage gemacht werden. Der Elektronenstrahl hat eine Kohärenzlänge von ca. 100 nm.

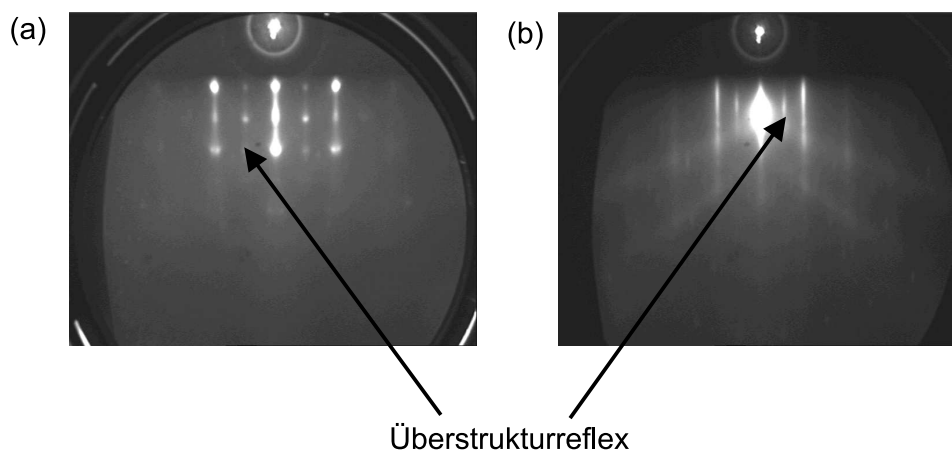


Abb. 4.5: Typische RHEED-Aufnahmen von epitaktischen CrPt_3 -Schichten. (a): Die punktförmigen RHEED-Reflexe weisen auf ein 3-dimensionales Kristallwachstum hin. (b): Dieser Film zeigt eine (mikroskopisch) glatte Oberfläche, was durch die streifenförmigen Reflexe belegt wird. Die Überstrukturefflexe (Pfeil) deuten auf das Vorliegen der geordneten L1_2 -Struktur hin.

Dadurch ergibt sich eine antiferromagnetische Kopplung zwischen benachbarten Mn-Atomen auf Eck- und Flächenplätzen. Für kleine x dagegen nimmt die Zahl von Mn-Atomen, die nächste Nachbarn auf den Eckplätzen besitzen, ab, so daß unterhalb von $x = 0,15$ überhaupt keine magnetische Ordnung auftritt. Beide Effekte führen also zu einer Verringerung der Gesamtmagnetisierung gegenüber stöchiometrischem MnPt_3 .

Dünne MnPt_3 -Filme zeigen eine magnetische Anisotropie, wobei die leichte Richtung der Magnetisierung *in plane*, also parallel zur Filmebene liegt. Die Curie-Temperatur von epitaktischen $\text{Mn}_x\text{Pt}_{1-x}$ -Filmen nimmt mit der Konzentration deutlich zu (von ca. 300 K bei $x = 0,2$ auf 650 K ($x = 0,35$)), was auf die unterschiedliche Verspannung bei variablem x zurückgeführt werden kann [67].

Diese für MnPt_3 gefundenen Ergebnisse gelten sinngemäß auch für CrPt_3 , so daß hier nur zwei wichtige Unterschiede herausgehoben werden sollen. Zum einen steht das induzierte magnetische Moment im Platin in CrPt_3 *antiparallel* zum Cr-Moment ($2,33\mu_B/\text{Cr-Atom}$ und $-0,27\mu_B/\text{Pt-Atom}$ [69]). Aus diesem Grund wird CrPt_3 in der Literatur oftmals auch als Ferrimagnet bezeichnet (mit jeweils ferromagnetischer Kopplung der beiden Untergitter).

Zum anderen wurde in dünnen CrPt_3 -Filmen auf MgO -Substraten eine *out of plane*-Anisotropie beobachtet [70]. Das Vorhandensein einer leichten Richtung der Magnetisierung senkrecht zur Filmebene ist eine Voraussetzung für einen magnetooptischen Datenspeicher, so daß CrPt_3 daher einen weitaus besser geeigneten Kandidaten darstellt als MnPt_3 . Allerdings ist die Anisotropiekonstante von CrPt_3 eine Funktion von vielen verschiedenen Herstellungsparametern. So wurde bei Verwendung von SrTiO_3 -Substraten

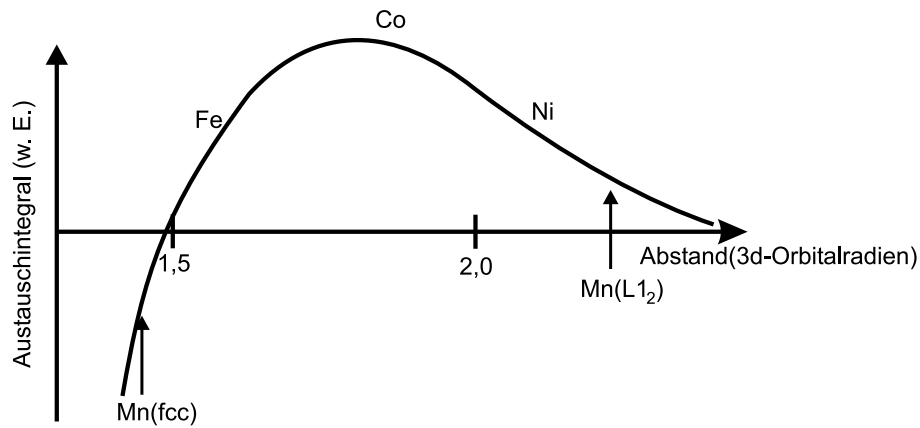


Abb. 4.6: Abhängigkeit des Austauschintegrals vom Abstand benachbarter 3d-Elemente. Für $MnPt_3$ in der L_{12} -Struktur ist J positiv, für fcc-Mn bzw. ungeordnetes $MnPt_3$ dagegen negativ.

bislang nur eine schwach ausgeprägte *out of plane*-Anisotropie festgestellt [64]. Zusätzliche Details der magnetischen Eigenschaften von Mn_xPt_{1-x} und Cr_xPt_{1-x} finden sich in [47].

5. Magnetismus im System $\text{U}_x\text{La}_{1-x}\text{S}$

Die magnetischen Eigenschaften der verdünnten Uransulfid-Verbindungen sind in jüngster Zeit Gegenstand zahlreicher Untersuchungen. Reines Uransulfid ist, ebenso wie die anderen Uranmonochalkogenide, ferromagnetisch und hat eine Ordnungstemperatur von 178 K [71]. Das magnetische Verhalten der Lanthanmonochalkogenide wird hauptsächlich von seinen Leitungselektronen bestimmt. LaS ist ein schwacher Paramagnet mit einer molaren Suszeptibilität von $\chi_{\text{Pauli}} = 1,8 \cdot 10^{-5} \text{ cm}^3/\text{mol}$ [72]. Bei einer Temperatur von 0,8 K geht LaS in den supraleitenden Zustand über [73].

Interessant dabei ist vor allem die Frage, wie sich die Mischkristallverbindungen magnetisch verhalten, bzw. bei welcher Konzentration die ferromagnetische Ordnung verschwindet. So wurde durch Messungen der Temperaturabhängigkeit der spezifischen Wärme und durch Neutronenstreuexperimente ein plötzlicher Zusammenbruch der magnetischen Ordnung für $x < 0,57$ beobachtet [58]. Diese Aussage stützt sich auch auf die Tatsache, daß für Konzentrationen unterhalb 57 % ausschließlich Gitter- und Elektronenbeiträge der spezifischen Wärme zu beobachten sind. Für Proben mit $x \geq 0,6$ finden sich dagegen auch andere Beiträge, die sich auf das Auftreten ferromagnetischer Ordnung zurückführen lassen. Im Gegensatz dazu lassen Magnetisierungsmessungen auch eine ferromagnetische Ordnung für deutlich geringere Konzentrationen erwarten, wobei aufgrund der Verdünnung das magnetische Moment mit der Urankonzentration abnimmt [74].

Die Neutronenstreuung gibt ähnlich der Röntgenbeugung Auskunft über die strukturellen Eigenschaften der untersuchten Probe, da die de-Broglie-Wellenlänge der thermischen Neutronen vergleichbar derjenigen von Röntgenstrahlung ist. Zusätzlich führt die Wechselwirkung des magnetischen Moments des Neutrons mit den Momenten der Kristallelektronen zu einem zusätzlichen Anteil der Streuintensität. Die Bestimmung der Curie-Temperatur geschieht über die Messung der Streuintensität in Abhängigkeit von der Temperatur. Die Nachweisgrenze für magnetische Momente hängt von dem magnetischen Formfaktor der streuenden Elemente ab und wird für $\text{U}_x\text{La}_{1-x}\text{S}$ mit $0,2\mu_B$ angegeben [58].

Myonen-Spin-Rotations(μSR)-Messungen bestätigen zwar einen deutlichen Rückgang des Uranmomentes für $x < 0,6$, allerdings nicht das völlige Verschwinden des Uranmoments, sondern ein Moment von $< 0,3\mu_B$ pro Uranatom [75]. Abb. 5.1 zeigt das geordnete magnetische Moment pro Uranatom in Abhängigkeit von x nach Bourdarot et al. [58] und Grosse et al. [75]. Die letztgenannten Autoren bestätigen darüber hinaus die Existenz eines magnetischen Phasenübergangs auch für Konzentrationen unterhalb $x = 0,6$, dessen Temperatur sich mit abnehmender Konzentration verringert.

Bei der Myonen-Spin-Rotation wechselwirkt ein positiv geladenes Myon mit den magnetischen Moment an einem Ort der Probe. Hierbei wird die Abhängigkeit der räumlichen Ver-

teilung der beim Myonenzerfall entstehenden Positronen ausgenutzt. Die Methode besitzt aufgrund des großen magnetischen Moments des Myons eine außerordentliche Empfindlichkeit von bis zu $0,001\mu_B$ [75]. Da das Myon mit dem *lokalen* Magnetfeld wechselwirkt, kann mit μ SR auch kurzreichweitige magnetische Ordnung nachgewiesen werden.

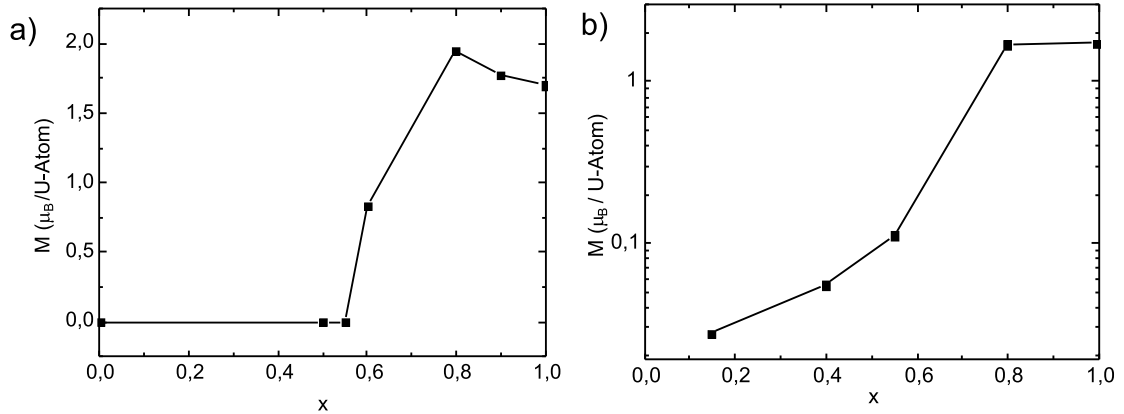


Abb. 5.1: Geordnetes magnetisches Moment von $\text{U}_x\text{La}_{1-x}\text{S}$ -Mischkristallen (ermittelt aus Neutronenstreuungs- [58] (a) und μ SR-Messungen [75] (b)). Man beachte die logarithmische Einteilung der y-Achse in der rechten Grafik.

Aus diesen Messungen geht hervor, daß sich auch noch für Konzentrationen bis ca. 25 % noch eine positive Übergangstemperatur ergibt. Diese Diskrepanz war der Anlaß, in dieser Arbeit auch auf die magnetischen Eigenschaften von $\text{U}_x\text{La}_{1-x}\text{S}$ einzugehen. Dazu wurden SQUID-Magnetisierungsmessungen angefertigt, die zum einen die Temperaturabhängigkeit der Magnetisierung in kleinen Feldern zeigen. Diese geben Auskunft über magnetische Ordnungstemperaturen. Zum anderen kann die aus einer Hystereseschleife die Gesamt-Sättigungsmagnetisierung M der Probe ermittelt werden. Aus dieser kann bei bekannter Stöchiometrie der Probe das geordnete magnetische Moment pro Uranatom ermittelt werden, und zwar nach folgender Beziehung:

$$x\mu_{B,U-Atom} = \frac{M \cdot 10^{-3}}{9,274 \cdot 10^{-24} \cdot N_A \cdot n_{Uran}}, \quad (5.1)$$

(N_A = Avogadro-Zahl = $6,023 \cdot 10^{23} \text{ mol}^{-1}$). Die Stoffmenge n_{Uran} bekommt man durch das Wägen der Probe und den Vergleich mit der Molmasse der jeweiligen $\text{U}_x\text{La}_{1-x}\text{S}$ -Verbindung unter Berücksichtigung der Urankonzentration x .

An einigen Proben wurden zusätzlich auch magnetooptische Hystereseschleifen aufgenommen, d. h. Messungen der Kerr-Rotation bei einer festen Wellenlänge in Abhängigkeit vom äußeren Magnetfeld. Unsere Magnetisierungsmessungen geben einen eindeutigen Hinweis darauf, daß für Proben mit $x \geq 0,3$ ferromagnetische Ordnung vorliegt. Beispielhaft dafür

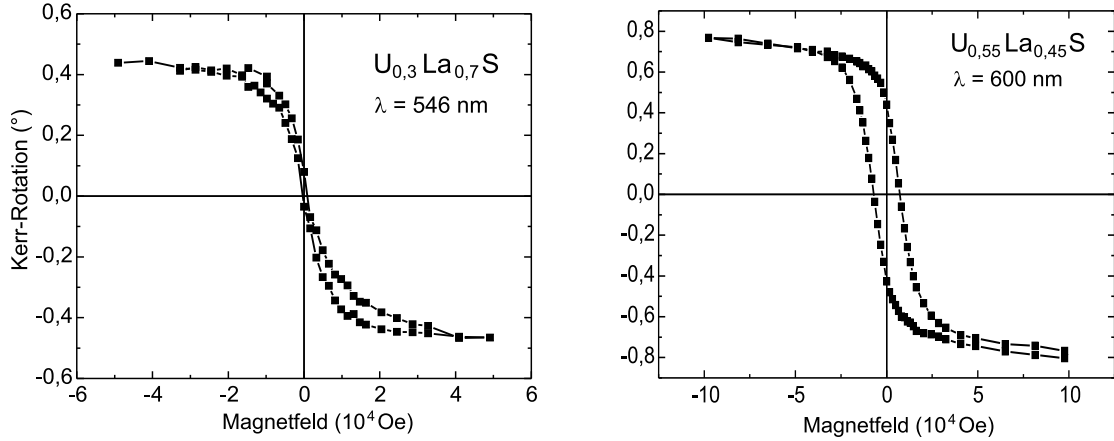


Abb. 5.2: Kerr-Rotations-Hysteresekurven von $U_{0,3}\text{La}_{0,7}\text{S}$ (links) und $U_{0,55}\text{La}_{0,45}\text{S}$ (rechts). Die Proben temperatur betrug jeweils etwa 15 - 20 K.

sind in Abb. 5.2 magnetooptische Hysteresekurven für $x = 0,3$ bzw. für $x = 0,55$ dargestellt.

Bei der $U_{0,55}\text{La}_{0,45}\text{S}$ -Probe ist eine ausgeprägte Remanenzmagnetisierung zu erkennen mit einem *squareness ratio* $\frac{M_R}{M_S}$ von ca. 0,6. Die Koerzitivfeldstärke liegt bei etwa 0,7 T. Bei der $U_{0,3}\text{La}_{0,7}\text{S}$ -Probe ist dagegen nur eine geringe Remanenzmagnetisierung vorhanden. Ein Vergleich mit bei unterschiedlichen Temperaturen aufgenommenen SQUID-Hysteresekurven an $U_{0,55}\text{La}_{0,45}\text{S}$ zeigt, daß die tatsächliche Temperatur, bei der die MOKE-Hysteresen aufgenommen wurden, bei ca. 20 K liegt, im Gegensatz zu den vom Widerstandsthermometer angezeigten 15 K. Diese Differenz ist sicherlich auf die unterschiedliche Position von Probe und Allen-Bradley-Widerstand zurückzuführen (siehe auch Kap. 3.1.2). Damit liegt man bereits sehr nahe bei der Curietemperatur von $U_{0,3}\text{La}_{0,7}\text{S}$ (siehe unten), was auch eine qualitative Erklärung für die schmale Form der Hysteresekurve liefern kann.

Die Curietemperaturen wurden aus der Temperaturabhängigkeit der Magnetisierung bei sehr kleinen angelegten Feldern bestimmt ($H \approx 10$ Oe). Abb. 5.3 verdeutlicht den Anstieg der Magnetisierung unterhalb ca. 30 K bei der untersuchten $U_{0,3}\text{La}_{0,7}\text{S}$ -Probe, der auf ein ferromagnetisches Verhalten unterhalb dieser Temperatur hindeutet.

Die Grafik zeigt aber auch noch etwas anderes: das Vorliegen einer zweiten ferromagnetischen Phase mit einem T_C von ca. 180 K. Dieses ist, wie bereits oben ausgeführt, die Ordnungstemperatur von reinem Uransulfid. Da, wie bereits im Kapitel 4.1.2 dargestellt, die $U_x\text{La}_{1-x}\text{S}$ -Proben aus den beiden Ausgangsmaterialien US und LaS hergestellt werden, liegt es daher nahe, daß diese Probe stark inhomogen ist, also ein Teil des US in Form von Clustern innerhalb der $U_{0,3}\text{La}_{0,7}\text{S}$ -Phase vorliegt. Weiterhin ist es nicht auszuschließen, daß diese Probe auch noch einen Anteil von LaS enthält, der bei der Herstellung nicht in Lösung gegangen ist. Dies ergibt sich zwangsläufig daraus, daß zur Herstellung von $U_{0,3}\text{La}_{0,7}\text{S}$ US und LaS im entsprechenden stöchiometrischen Verhältnis angeboten

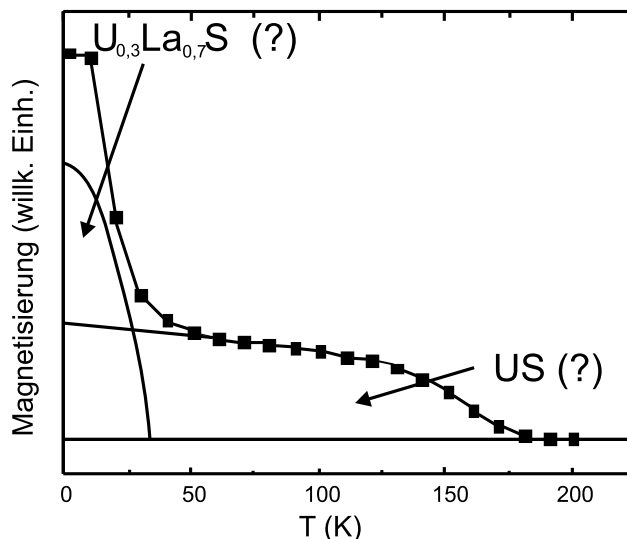


Abb. 5.3: Temperaturabhängige Magnetisierung einer Probe mit der nominellen Zusammensetzung $U_{0.3}La_{0.7}S$. Man sieht sehr deutlich zwei verschiedene magnetische Phasen mit Curietemperaturen von ca. 30 bzw. 180 K.

werden mußten. Allerdings kann aufgrund des paramagnetischen Verhaltens des LaS eine möglicherweise vorhandene Phase mit der verwendeten Meßmethode nicht nachgewiesen werden. Daraus folgt auch, daß über die *tatsächliche* Zusammensetzung der Probe nur sehr vage Aussagen gemacht werden können. Derartige $M(T)$ -Messungen wurden auch an anderen $U_xLa_{1-x}S$ -Proben durchgeführt. Abb. 5.4 zeigt das Ergebnis¹.

Man erkennt klar, daß die Curie-Temperatur mit zunehmender Konzentration steigt, bis sie beim US etwa 180 K beträgt. Ebenfalls läßt sich abschätzen, inwieweit die Proben homogen sind. In der Probe mit $x = 0,4$ liegt ebenfalls, wie auch bei $x = 0,3$, eine andere Phase vor, wobei deren Anteil an der Gesamtmagnetisierung allerdings geringer ist. Die anderen Proben, die in Abb. 5.4 gezeigt werden, können (zumindest vom magnetischen Verhalten her) als einigermaßen homogen betrachtet werden. Nicht dargestellt ist die $M(T)$ -Messung an $U_{0.6}La_{0.4}S$. Diese Probe besitzt einen Anteil einer weiteren Phase, bei der es sich wahrscheinlich um US handelt, der noch erheblich größer ist als derjenige, der in Abb. 5.3 zu sehen ist.

Messungen an Proben mit $x = 0,08$ und $x = 0,15$ zeigten dagegen über den ganzen untersuchten Temperaturbereich ein paramagnetisches Verhalten. Da der Schwerpunkt dieser Arbeit auf dem Konzentrationsbereich liegt, in dem magnetische Ordnung vor-

¹ Das (kleine) angelegte Feld ist aufgrund der Remanenz des SQUID-Magneten nicht genau bekannt. Da die gemessene Magnetisierung aber vom angelegten Feld abhängt, wurde auf eine Angabe der Absolutwerte der gemessenen Magnetisierung verzichtet und die Ordinate stattdessen mit „willk. Einh.“ beschriftet.

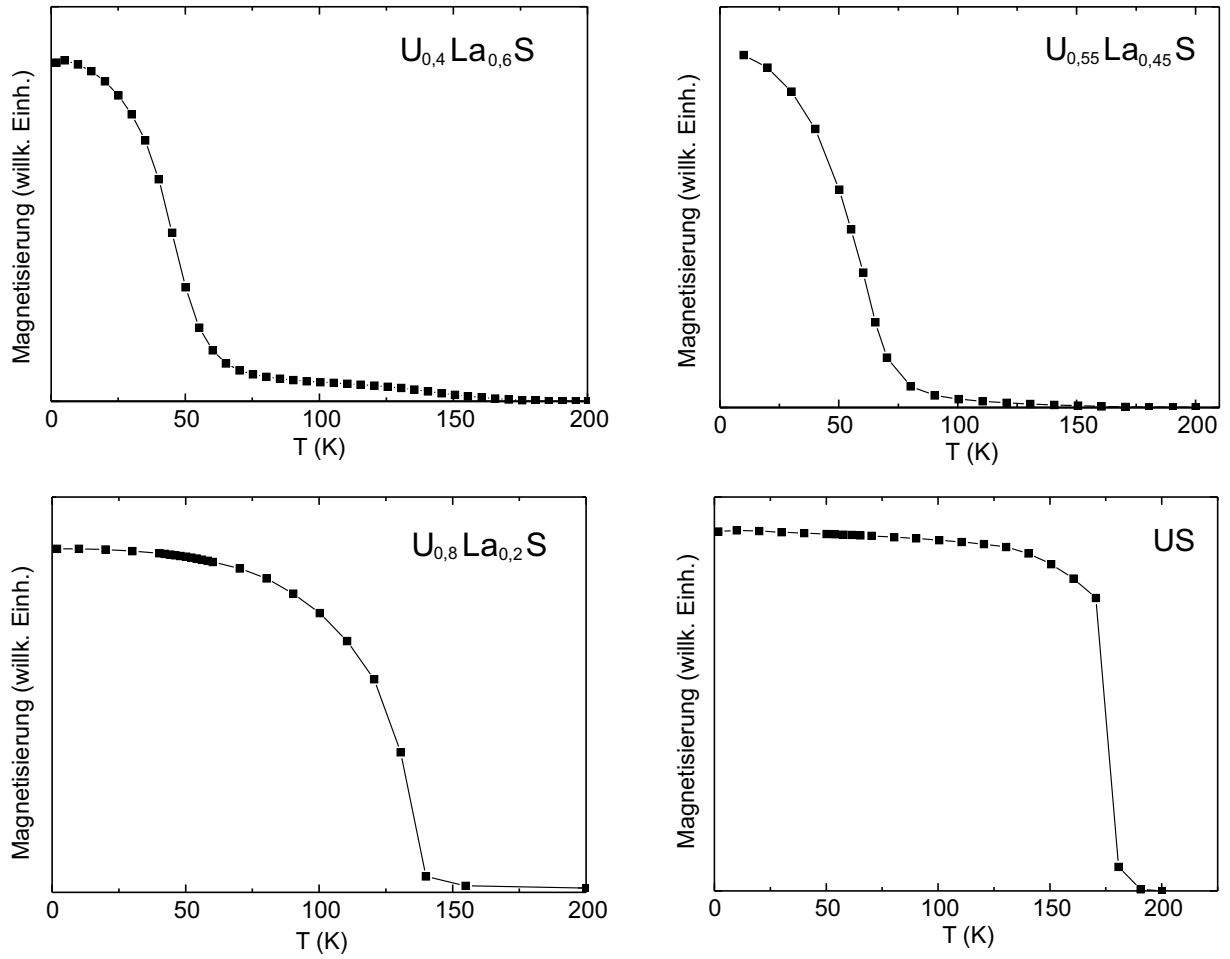


Abb. 5.4: Temperaturabhängigkeit der Magnetisierung für $U_xLa_{1-x}S$ -Proben verschiedener Konzentrationen.

liegt, wird im weiteren Verlauf auf die Proben mit $x < 0,3$ nicht näher eingegangen. Die aus den $M(T)$ -Untersuchungen für $U_xLa_{1-x}S$ ermittelten magnetischen Ordnungstemperaturen sind in Abb. 5.5 zusammen mit denjenigen aus μ SR-Messungen [75] sowie aus Neutronenstreuexperimenten [58] dargestellt.

Es gibt fast durchgängig eine gute Übereinstimmung zwischen den Ergebnissen, lediglich bei $U_{0,55}La_{0,45}S$ messen Grosse *et al.* eine um ca. 30 K höhere Übergangstemperatur. Möglicherweise handelt es sich dabei um Proben von unterschiedlichen *batches*, d. h. aus verschiedenen Kristallzüchtexperimenten, die sich in ihrer Zusammensetzung etwas unterscheiden können. Ansonsten nimmt die Curietemperatur in guter Näherung linear mit abnehmendem x ab, bis bei ca. 20 % Urananteil die magnetische Ordnung verschwindet. Es soll an dieser Stelle angemerkt werden, daß Bourdarot *et al.* [58] bei $x \geq 0,6$ Curie-Temperaturen finden, die mit denjenigen, die in dieser Arbeit gefunden wurden, gut übereinstimmen. Da die Autoren aber, wie bereits dargestellt, unterhalb von $x = 0,6$ keine magnetische Ordnung mehr beobachten, folgt daraus, daß sie in $U_xLa_{1-x}S$ keine Kompo-

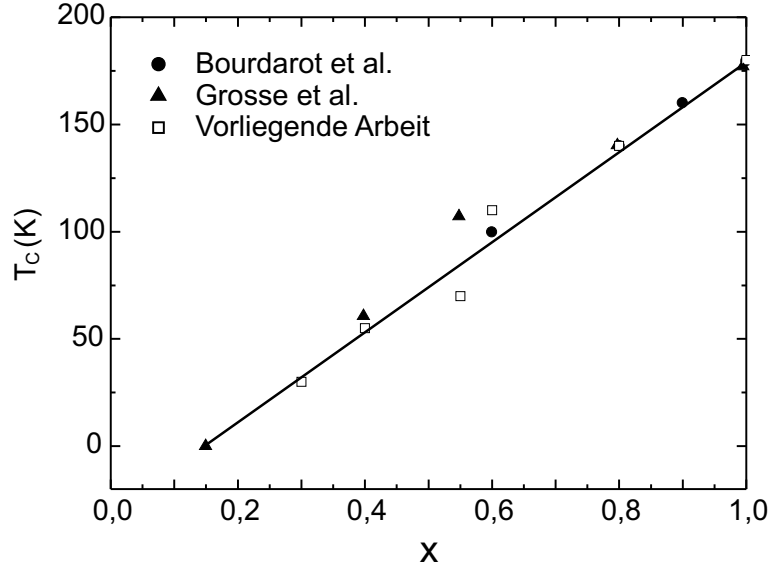


Abb. 5.5: Ordnungstemperaturen von $U_xLa_{1-x}S$, durch SQUID-Magnetometrie ermittelt. Zum Vergleich die aus Neutronenstreu- und μSR -Experimenten gewonnenen Werte.

nenten finden, die magnetisch ordnen und gleichzeitig eine Curie-Temperatur unterhalb 100 K besitzen.

Zum Abschluß dieses Kapitels soll noch ein näherer Blick auf die ermittelten magnetischen Momente sowie das Hystereseverhalten von diversen $U_xLa_{1-x}S$ -Proben geworfen werden. Abb. 5.6 zeigt auf der rechten Seite die Hysteresekurven von $U_{0,8}La_{0,2}S$ bei in [100]-, [110]- und [111]-Richtung angelegtem äußeren Feld.

Zunächst fällt auf, daß die Sättigungsmagnetisierung für die unterschiedlichen Kristallrichtungen verschiedene Werte annimmt. Sie ist maximal in [111]-Richtung und beträgt $1,52 \mu_B/U$ -Atom, wie aus der Probenmasse von 21 mg und Gl. 5.1 errechnet werden kann. Die [111]-Richtung ist, wie auch beim US, die leichte Richtung der Magnetisierung. Die Werte der Sättigungsmagnetisierung für die anderen Kristallrichtungen weisen auf eine starke magnetische Anisotropie der Probe hin: Die Werte für die [100]-Richtung ($0,85 \mu_B/U$ -Atom) und für die [110]-Richtung ($1,20 \mu_B/U$ -Atom)² deuten darauf hin, daß man in diesen Richtungen jeweils nur die Projektion der in [111]-Richtung angeordneten Momente in diese Richtungen sieht. Theoretisch würden sich für die Projektionen in kubischen Kristallen folgende Werte ergeben:

$$M([110]) = M([111])/\sqrt{3/2} = 1,24\mu_B, \quad (5.2)$$

$$M([100]) = M([111])/\sqrt{3} = 0,88\mu_B. \quad (5.3)$$

² Wie in Abb. 5.6 zu sehen, ist die Hysteresekurve in [110]-Richtung nicht punktsymmetrisch. Die Sättigungsmagnetisierung wurde deshalb aus dem betragsmäßigen Mittelwert der beiden Magnetisierungswerte bei +5 T und -5 T ermittelt.

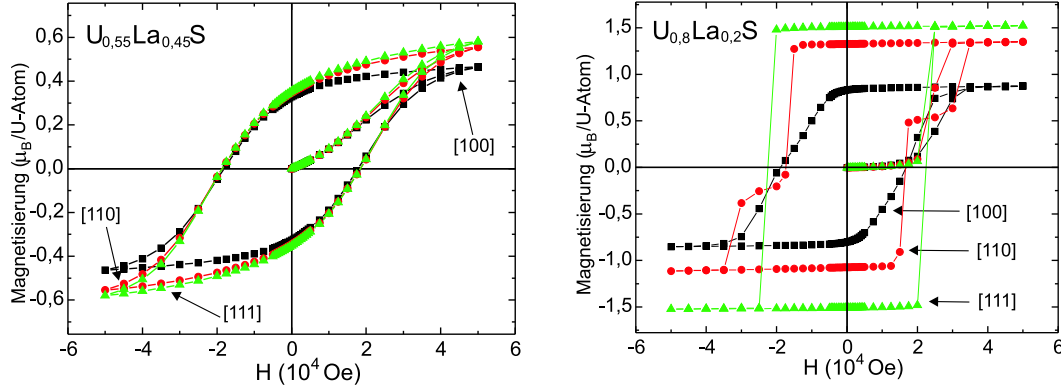


Abb. 5.6: SQUID-Hysteresemessungen bei $T = 10$ K von $U_{0,55}La_{0,45}S$ (links) und $U_{0,8}La_{0,2}S$ (rechts) in [100]-, [110]- und [111]-Richtung.

Diese Ergebnisse stehen im Einklang mit Messungen an anderen Uranmonochalkogeniden wie UTe [49] oder USE [76].

Gleiches gilt für den Vergleich zwischen dem Verlauf der Neukurve und der Hysteresekurve bei $U_{0,8}La_{0,2}S$. Abb. 5.6 zeigt, daß zumindest bei den Magnetisierungsmessungen in [100]- und in [110]-Richtung die Neukurve teilweise *außerhalb* der Hystereseschleife liegt. Auch dieses Phänomen wurde bereits bei USE [111] [76], USE [100] [49] und UTe [100] [77] beobachtet. Vogt [49] liefert dafür folgende Erklärung: In den Uranmonochalkogeniden tritt eine deutliche Verzerrung des kubischen Kristallgitters durch Magnetostriktionseffekte auf. In der unmagnetisierten Probe sind die Magnetisierungsrichtungen der Domänen statistisch verteilt, wodurch die Probe *insgesamt* keine Veränderung ihrer Kristallstruktur erfährt (Abb. 5.7 a). Anders liegen die Dinge, wenn nach einem Hystereseumlauf die Gesamtmagnetisierung bei H_c wieder bei 0 liegt: Hier sind die Domänen überwiegend in der Richtung des beim Hystereseumlauf angelegten Feldes orientiert (Abb. 5.7 b). Dadurch tritt eine Magnetostriktion, d. h. eine Längenänderung der Probe in der Richtung auf, in der die Domänen magnetisiert sind.

Die Änderung der Gitterkonstante in der Magnetisierungsrichtung nimmt Werte von bis zu -1 % an [49]. Aufgrund der hohen Anisotropie dominiert bei der Ummagnetisierung eine diskontinuierliche Reorientation von Domänen („Umklappen“) gegenüber dem kontinuierlichen Wachstum der in Feldrichtung orientierten Domänen. Dieses erklärt, warum sich auch die Magnetisierung bei bestimmten Feldern diskontinuierlich ändert (sogenannte *Barkhausen-Sprünge*), wie es z. B. in Abb. 5.6 bei der [110]- sowie der [111]-Hysteresekurve von $U_{0,8}La_{0,2}S$ zu sehen ist. Die Blochwände in den Uranmonochalkogeniden sind bei tiefen Temperaturen ($T < 10$ K) sehr schmal (wenige Atomlagen), was ebenfalls auf eine sehr hohe Anisotropieenergie schließen läßt.

Dagegen ist die Anisotropie bei größerer Verdünnung ($U_{0,55}La_{0,45}S$, Abb. 5.6 links) nur

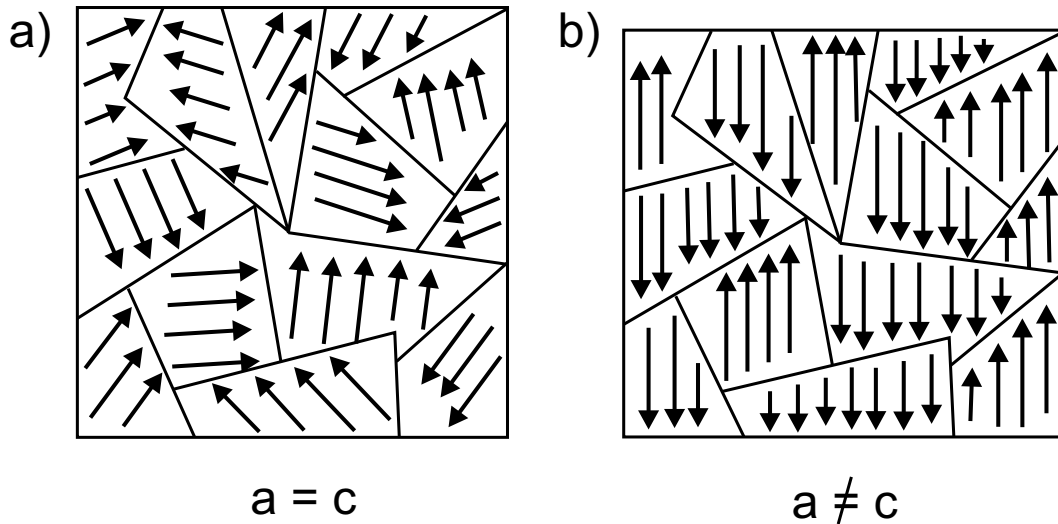


Abb. 5.7: Feldabhängigkeit der Magnetisierung in Uranchalkogeniden. a): Statistische Verteilung der Magnetisierungsrichtungen der Domänen vor der Magnetisierung der Probe ($H = 0$). Es tritt keine strukturelle Verzerrung auf. b): Bei $H = H_c$ ist nach einem Hystereseyumlauf die Gesamtmagnetisierung ebenfalls 0, aber die Domänen sind in Richtung des angelegten Feldes ausgerichtet. Das Kristallgitter ist verzerrt, d. h. die Gitterkonstante ist in Feldrichtung (c) kleiner als senkrecht zum Feld (a).

schwach ausgeprägt. Die $[111]$ -Richtung ist hier ebenfalls die leichte Richtung der Magnetisierung. Die Form der Hysteresekurven ist in allen Kristallrichtungen nahezu identisch und weist keine Sprünge auf. Allerdings ist auch hier die Sättigungsmagnetisierung in $[111]$ -Richtung am größten und in $[100]$ -Richtung am geringsten. Wie ein Vergleich mit Abb. 5.4 zeigt, ist der Fremdphasen-Anteil in dieser Probe sehr gering, so daß die gemessene Anisotropie in der $U_{0,55}La_{0,45}S$ -Probe nicht ausschließlich auf US-Einschlüsse zurückführbar sein sollte. Abb. 5.8 zeigt Hysteresekurven von $U_xLa_{1-x}S$ bei $T = 10$ K. Man sieht deutlich, daß sich die Kurvenform bei mittleren Urankonzentrationen ($x = 0,4$ bzw. $x = 0,55$) von denjenigen Hystereseschleifen bei hohen x dahingehend unterscheidet, daß hier eine kontinuierliche Änderung der Magnetisierung stattfindet und keine Barkhausen-Sprünge auftreten.

Dafür kann es mehrere Ursachen geben: Barkhausen-Sprünge können insbesondere dann beobachtet werden, wenn es nur wenig Möglichkeiten zu Bildung von Ummagnetisierungskeimen gibt [24]. Daher könnte die unterschiedliche kristalline Qualität der Proben für die Verschiedenartigkeit des Hystereseverhaltens verantwortlich sein. Bereits bei der Diskussion der Curietemperaturen ist darauf hingewiesen worden, daß z. B. die untersuchte $U_{0,4}La_{0,6}S$ -Probe Inhomogenitäten wahrscheinlich in Form von US- und LaS-Einschlüssen aufweist. Diese können die Keimbildung erleichtern und zu einer „normalen“, d. h. kontinuierlichen Hysteresekurve führen. Zum anderen treten Barkhausen-Sprünge nur auf, falls die Probe vorher vollständig magnetisiert war [78]. Dies ist aber bei $x = 0,4$ und $x = 0,55$ nicht der Fall, wie aus Abb. 5.8 deutlich wird. Die magnetooptische Hysteresekurve an $U_{0,55}La_{0,45}S$ (Abb. 5.2) zeigt dagegen einen leichten Anstieg der magnetooptischen

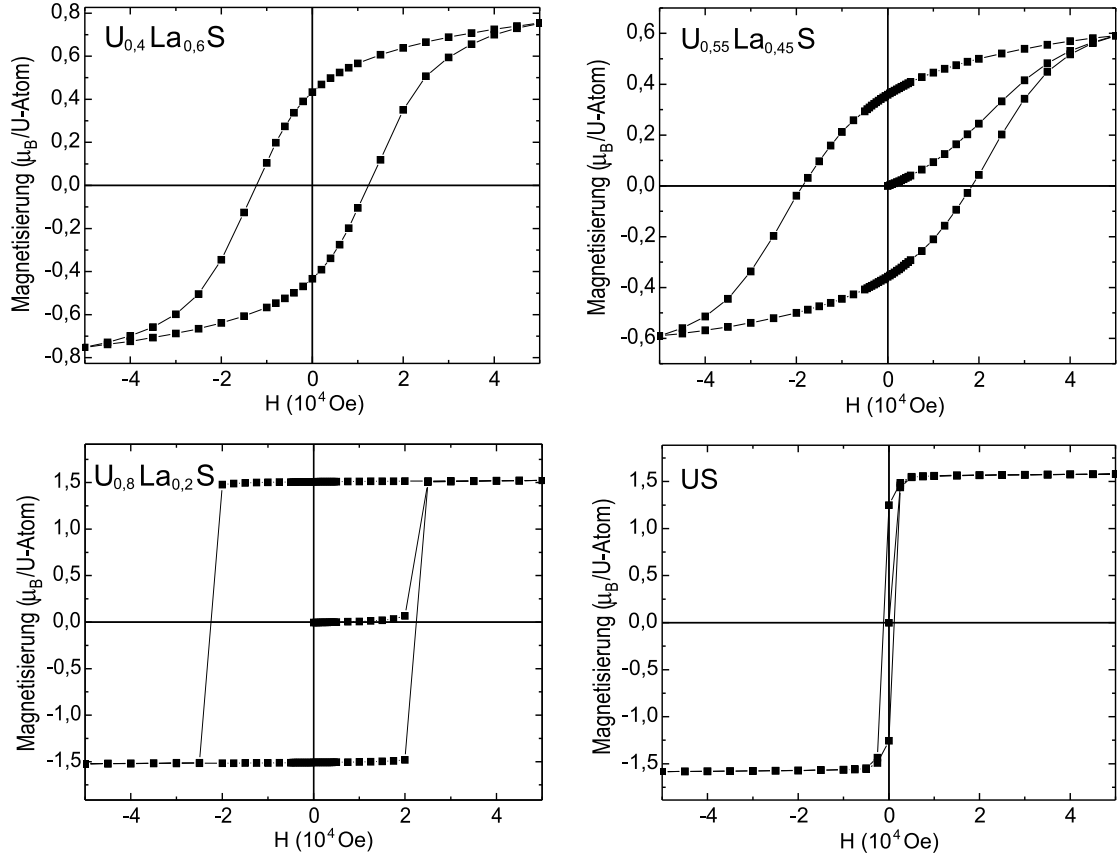


Abb. 5.8: SQUID-Hysteresemessungen für $U_xLa_{1-x}S$ -Proben verschiedener Konzentrationen. Alle Messungen wurden bei $T = 10$ K aufgenommen.

Kerr-Drehung noch bei Feldern von 10 T, der möglicherweise auch auf paramagnetische Einschlüsse hindeutet. Schließlich kann auch die magnetische Anisotropie im mittleren Konzentrationsbereich weniger stark ausgeprägt sein als für $U_{0,8}La_{0,2}S$ oder für reines Uransulfid. Eine hohe Anisotropie begünstigt ebenfalls die nicht kontinuierlichen Sprünge in der Magnetisierungskurve.³

Die Koerzitivfeldstärke ist bei reinem Uransulfid weitaus geringer als bei den Mischkristallen. Tillwick und du Plessis haben mit *vibrating sample magnetometer*-Messungen an US ebenfalls eine verhältnismäßig schmale Hystereseschleife mit einem $H_c < 5000$ Oe gefunden [74]. Die Erklärung hierfür ist wahrscheinlich darin zu suchen, daß es im US verglichen mit den ternären Verbindungen eine weit geringere Anzahl von Störungen im

³ Barkhausen-Sprünge wurden erstmals 1926 an einem Nickeldraht gefunden, der unter mechanischer Spannung stand [79]. Eine hohe Magnetostriktion hat einen vergleichbaren Effekt. Andererseits wurden Sprünge in der Magnetisierungskurve auch ohne mechanische Spannung bei sehr dünnen Drähten gefunden, die eine große Formanisotropie besitzen [80]. Wenn nun das Material (wie US) eine extreme Anisotropiekonstante besitzt, sollten solche Sprünge auch ohne Formanisotropie auftreten können.

Kristallgitter gibt, welche die Ummagnetisierung erschweren und damit die Koerzitivfeldstärke erhöhen können.

Aus der Sättigungsmagnetisierung wurde darüber hinaus noch das magnetische Moment pro Uranatom für unterschiedliche $U_xLa_{1-x}S$ -Proben bestimmt. Die Tabelle 5.1 liefert eine Übersicht über die ermittelten Momente der untersuchten Proben.

Verbindung	mag. Moment (μ_B /U-Atom)
US	1,58
$U_{0,8}La_{0,2}S$	1,52
$U_{0,55}La_{0,45}S$	0,59
$U_{0,4}La_{0,6}S$ (?)	0,75

Tab. 5.1: Aus SQUID-Magnetisierungsmessungen nach Gl. 5.1 ermitteltes magnetisches Moment für unterschiedliche Urankonzentrationen. Da die $U_{0,4}La_{0,6}S$ -Probe ähnlich der $U_{0,3}La_{0,7}S$ mehrere magnetische Phasen besitzt, kann die tatsächliche Konzentration stärker vom nominellen Wert abweichen.

Die Momente bei der US-Probe sowie bei der $U_{0,8}La_{0,2}S$ -Probe stimmen gut mit den Werten überein, die bereits von anderen Gruppen gefunden wurden. Für $U_{0,4}La_{0,6}S$ und $U_{0,55}La_{0,45}S$ liegt das magnetische Moment pro Uranatom allerdings erheblich höher als im μ SR-Experiment gemessen. Dagegen stimmt der Wert für $U_{0,55}La_{0,45}S$ recht gut mit dem aus Magnetisierungsmessungen an einer anderen Probe gleicher Konzentration überein [59].

Zusammenfassend läßt sich sagen, daß wir für $x \geq 0,3$ in allen Proben eine magnetische Ordnung beobachten konnten. Während das magnetische Moment per Uranatom für $x = 1$ und $x = 0,8$ eine vergleichbare Größe besitzt, gibt es für Urankonzentrationen unterhalb $x = 0,6$ tatsächlich einen starken Abfall des magnetischen Moments. Allerdings kann ein generelles Verschwinden des geordneten Moments, wie von Bourdarot *et al.* gemessen [58] sowie von Cooper *et al.* theoretisch vorhergesagt [81], im Rahmen der durchgeführten Magnetisierungsmessungen nicht bestätigt werden. Das Hystereseverhalten einer uranreichen Probe steht in guter Übereinstimmung mit Ergebnissen an anderen Uranchalkogenid-Proben und deutet auf eine sehr stark ausgeprägte Anisotropie hin. Diese ist mit abnehmendem Urangehalt dagegen erheblich weniger stark ausgeprägt.

6. Magnetooptische Untersuchungen an $U_xLa_{1-x}S$

Ein wichtiger Teil dieser Arbeit lag in der Untersuchung der optischen und magnetooptischen Eigenschaften von $U_xLa_{1-x}S$ -Kristallen mit verschiedener Urankonzentration x . Interessant ist dabei vor allem der zu erwartende Übergang vom eher itineranten Verhalten der $5f$ -Elektronen im US zu einer stärkeren Lokalisierung mit zunehmender Verdünnung durch Lanthan.

Die magnetooptischen Spektren der beiden „Extremfälle“ US und LaS ($x = 0$ bzw. 1) sind bereits vor einiger Zeit publiziert und im Rahmen verschiedener Modelle interpretiert worden. Daher wird am Anfang dieses Kapitels ein Überblick über diese Ergebnisse gegeben, bevor im darauffolgenden Teil die Messungen an den Mischkristallen vorgestellt und diskutiert werden. Die Variation des Lokalisationsgrads der f -Elektronen ist sowohl in der Optik als auch der Magnetooptik sehr gut erkennbar.

6.1 Die binären Verbindungen: US und LaS

6.1.1 US

Die magnetooptischen Eigenschaften von ferromagnetischem US wurden 1983 von Reim et al. [82] untersucht. Die Spektren der magnetooptischen Kerr-Rotation und -Elliptizität sind in Abb. 6.1 b gezeigt¹.

Auffällig ist, wie auch in den MO-Spektren der anderen Uran- und vieler Seltenerdmonochalkogenide, der außerordentlich große Drehwinkel von ca. $2,7^\circ$ im Maximum der Rotation und über 3° bei der Elliptizität.

Eng mit dem magnetooptischen Kerr-Effekt sind die optischen Eigenschaften von US verknüpft. Schoenes [84] hat 1980 die Reflektivität an gespaltenen Einkristallen gemessen (Abb. 6.1 a) und mit Hilfe der Kramers-Kronig-Relation den Realteil der optischen Leitfähigkeit berechnet (Abb. 6.2 a).

Durch Anfügen von Lorentz-Oszillatoren sowie eines Drudeterms an das σ_{1xx} -Spektrum konnten Ladungsträgerkonzentration und Übergangsenergien bestimmt werden. Im Spektralbereich unterhalb 4 eV findet man bei 1,1 eV und 2,8 eV starke Interbandbeiträge, die als Übergänge von besetzten $5f$ - in freie $6d$ - bzw. von besetzten $6d$ - in freie $5f$ -Niveaus gedeutet wurden. Die Strukturen im Reflexionsspektrum oberhalb von 5 eV kommen dagegen von $4p - 6d$ -Übergängen.

Um Aussagen über die magnetooptische Aktivität dieser Übergänge machen zu können,

¹ Die Originalveröffentlichung von Reim gibt Kerr-Spektren an, die sich von denen in Abb. 6.1 um den Faktor -1 unterscheiden. Dieser Fehler wurde in späteren Arbeiten korrigiert.

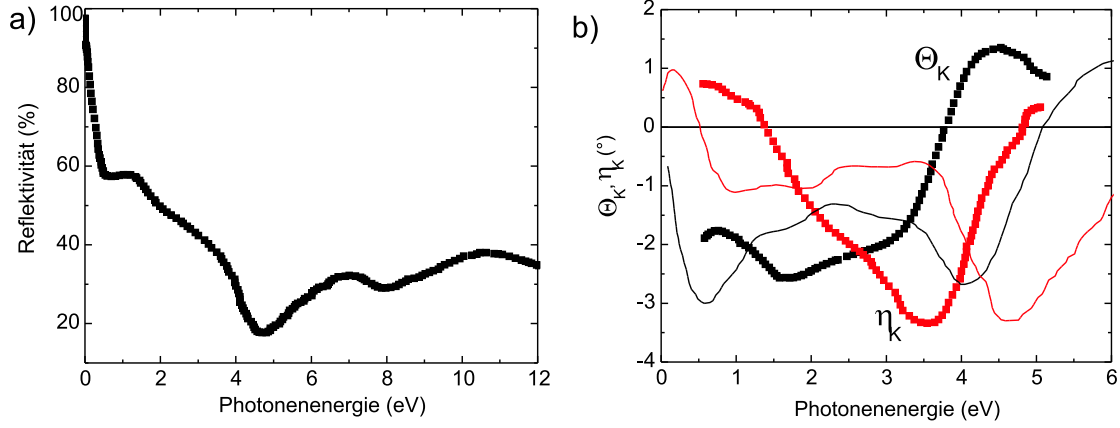


Abb. 6.1: (a) Gemessene Reflektivität von US [84]. (b) Magnetooptischer Kerr-Effekt an US [82]. Zum Vergleich ist ein berechnetes Kerr-Spektrum (durchgezogene Linien) angegeben [83].

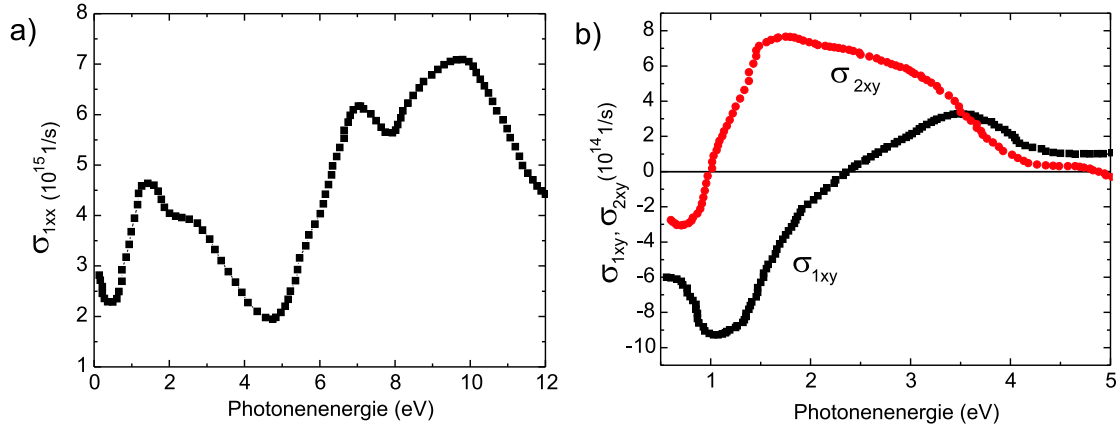


Abb. 6.2: (a): Diagonalelement der optischen Leitfähigkeit von US [84]. (b) Aus Θ_K , η_K und $\tilde{\sigma}_{xx}$ berechnetes Nichtdiagonalelement der optischen Leitfähigkeit [88].

wurde die nichtdiagonale optische Leitfähigkeit ausgerechnet. Eine Anpassung an analytische Linienformen (siehe dazu auch Kapitel 2.2) ermöglichte die Zerlegung des Spektrums in Interband- und Intrabandanteile. Aus der Größe des Drudeterms von $\tilde{\sigma}_{xy}$ konnte die Spinpolarisation der $6d$ -Elektronen zu -42 % und aus dem *totalen Gewicht*

$$\langle \sigma_{2xy} \rangle = \int_{f-d} |\sigma_{2xy}(\omega)| d\omega \quad (6.1)$$

des $f-d$ -Übergangs schließlich auch die Spinpolarisation der $5f$ -Elektronen zu 62% abgeschätzt werden [88]. Die Breite der Übergänge von mehr als 1 eV sowie die Stärke der Oszillatoren geben darüber hinaus Hinweis auf ein eher delokalisiertes Verhalten der $5f$ -Elektronen in dieser Verbindung.

Kraft et al. [83] haben im Rahmen von LSDA (*local spin density approximation*)-Bandstrukturechnungen versucht, dieses Spektrum zu interpretieren. Das Ergebnis dieser Rechnung ist ebenfalls in Abb. 6.1 b dargestellt. Die theoretischen Ergebnisse unterscheiden sich von den experimentellen dahingehend, daß in der berechneten Kerr-Rotation eine Doppelpeakstruktur erscheint, während das Experiment nur ein einfaches Minimum mit einer Schulter liefert. Die LSDA-Methode geht dabei von einem itineranten Charakter der beteiligten Elektronen aus. Oppeneer et al. [86] haben daher eine Verbesserung des verwendeten Modells vorgeschlagen: Die Anregung des $5f$ -Elektrons durch ein Photon bewirkt das Auftreten eines Lochs in der $5f$ -Schale, das durch die umliegenden Elektronen abgeschirmt wird. Zudem wurde in der LSDA-Rechnung ein „Hubbard-U“ eingeführt, mit dem die Coulomb-Wechselwirkung der f -Elektronen berücksichtigt wird. Auf diese Weise wird dem teilweise lokalisierten Charakter der $5f$ -Elektronen Rechnung getragen [87]. Die Berücksichtigung dieses $5f$ -Loch-Zustands bringt eine weitaus bessere Übereinstimmung der Strukturen in den Θ_K - bzw. η_K -Spektren mit dem Experiment. Abb. 6.3 zeigt den Vergleich zwischen der experimentellen Kurve und dem Spektrum aus der verbesserten Bandstrukturechnung. Die Abweichung in den Absolutwerten kann zum Teil damit erklärt werden, daß in den Rechnungen normalerweise der Intrabandanteil des Nichtdiagonalelements nicht berücksichtigt ist, so daß nur die spektrale Lage der Interbandübergänge korrekt wiedergegeben werden kann.

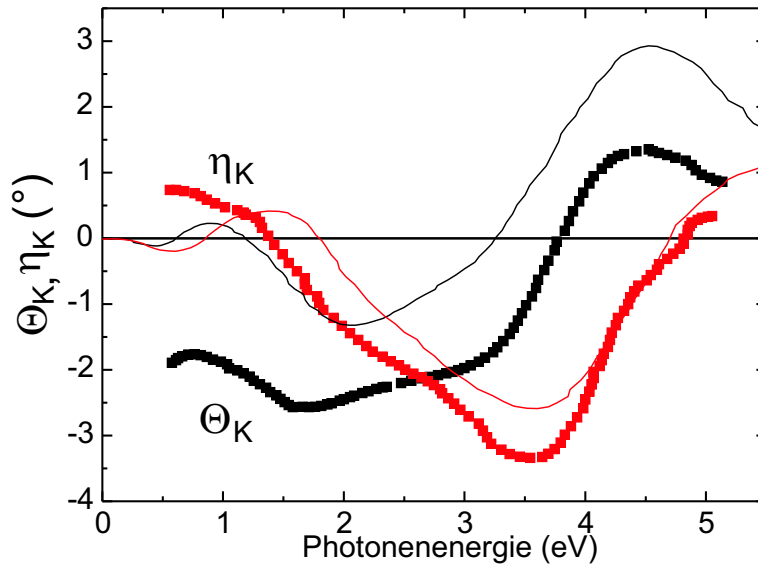


Abb. 6.3: Das experimentelle Kerr-Spektrum von US wird erheblich besser angepaßt, wenn in den LSDA-Bandstrukturechnungen (durchgezogene Linien) ein Hubbard-U sowie ein „abgeschirmtes Loch“ in den $5f$ -Zuständen eingeführt wird [86].

6.1.2 LaS

Im Gegensatz zu US besitzt die binäre Verbindung LaS keine f -Elektronen und ist, wie bereits in Kap. 5 dargestellt, nicht ferro- sondern paramagnetisch. Von daher könnte man erwarten, daß bei diesem Material nur sehr geringe Drehwinkel auftreten. 1997 fanden Pittini et al. [89] allerdings eine Kerr-Drehung von über 2° bei einer Energie von ca. 2,8 eV bzw. eine schwächere Struktur bei 3 eV in dem ebenfalls paramagnetischen LaSe und interpretierten dieses Ergebnis dahingehend, daß eine Anregung in die *leeren* $4f$ -Zustände des Lanthans für das Auftreten des magnetooptischen Effekts verantwortlich ist. Darauf aufbauend, untersuchten Salghetti-Drioli et al. [90] die beiden anderen Lanthanchalkogenide LaS und LaTe, wobei eine Temperatur von 2 K bei einem äußeren Magnetfeld von 10 T gewählt wurde, um eine Sättigung des paramagnetischen Moments zu erreichen. Das Kerr-Spektrum von LaS ist in Abb. 6.4 b dargestellt.

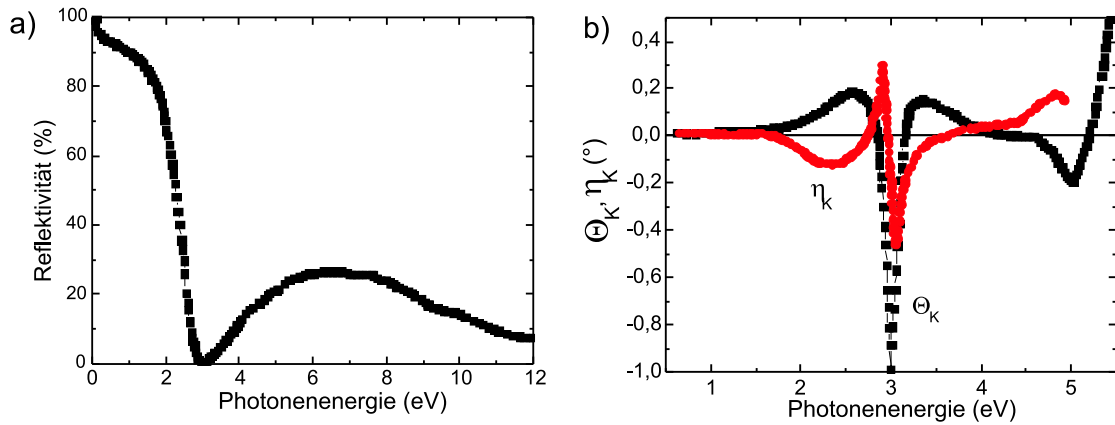


Abb. 6.4: (a): Reflektivitätsspektrum von LaS (siehe z. B. [91]). b) Magnetooptisches Kerr-Spektrum bei $T = 2$ K und $H = 100$ kOe [90].

Auffällig ist auch hier eine scharfe Struktur bei ca. 3,0 eV. Zum besseren Verständnis ist in Abb. 6.4 a ein Reflektivitätsspektrum von LaS gezeigt (siehe [91, 92]). Die Lanthanmonochalkogenide besitzen im infraroten und sichtbaren Spektralbereich keine Interbandübergänge und folgen dort in fast idealer Weise dem Drude-Zener-Verhalten. Im Bereich der Plasmakante geht die Reflektivität auf Werte unterhalb 1 % zurück. Man erkennt sofort, daß die scharfen Strukturen im Kerr-Spektrum energetisch mit dem Plasmakanten-Reflexionsminimum zusammenfallen, wodurch auch die außerordentliche Größe des auftretenden Kerr-Effekts erklärlich wird. Die im UV liegenden Interbandübergänge in die $4f$ -Zustände sorgen für eine Abschirmung der Plasmafrequenz. Zusätzlich tragen diese Übergänge durch ihre Spinpolarisation selbst zum magnetooptischen Spektrum bei, was besonders gut in den Nichtdiagonalelementen der optischen Leitfähigkeit (Abb. 6.5 b) erkennbar wird.

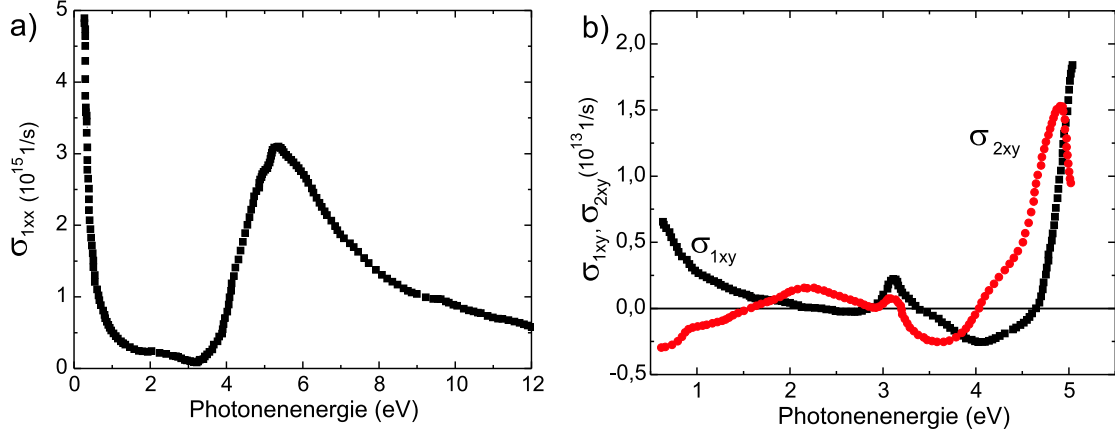


Abb. 6.5: (a): Diagonalelement der optischen Leitfähigkeit von LaS [90]. (b) Aus Θ_K , η_K und $\tilde{\sigma}_{xx}$ berechnetes Nichtdiagonalelement der optischen Leitfähigkeit [90].

Die schwache Struktur im $\tilde{\sigma}_{xy}$ -Spektrum im Bereich des Plasmakanten-Reflexionsminimums könnte auch einen extrinsischen Ursprung haben, z. B. auf Ungenauigkeiten bei der Ermittlung der diagonalen optischen Leitfähigkeit in diesem Bereich zurückzuführen sein. Bereits eine minimale spektrale Verschiebung der Struktur im Kerr-Spektrum gegenüber dem Minimum von R bewirkt einen, wenn auch kleinen, Beitrag zum Nichtdiagonalelement von $\tilde{\sigma}$.

6.2 Messungen an $U_xLa_{1-x}S$

6.2.1 $U_{0,55}La_{0,45}S$

Abb. 6.6 zeigt die magnetooptische Kerr-Rotation und -Elliptizität von $U_{0,55}La_{0,45}S$. Die Messungen wurden bei einer Temperatur von ca. 20 K sowie einem äußeren Feld von 65 kOe aufgenommen. Bei dieser Feldstärke ist die Probe annähernd in der magnetischen Sättigung (vgl. auch Abb. 5.2). Das Spektrum unterscheidet sich deutlich von demjenigen des Uransulfids. Dominant ist ein ausgeprägtes Minimum der Kerr-Elliptizität von $-1,4^\circ$ bei ca. 3,3 eV, während sich bei dieser Energie eine breite, resonanzartige Struktur der Kerr-Rotation befindet ($\Theta_{K,extr} = -1,46^\circ$ bei 3,2 eV). Zu niedrigen Energien hin nimmt die Größe sowohl von Θ_K als auch von η_K erheblich ab.

Das Auftreten dieser Strukturen im Kerr-Spektrum lässt sich in diesem Falle durch das Auftreten eines optischen Verstärkungseffektes erklären. Zur Verdeutlichung ist in Abb. 6.7 die dielektrische Funktion sowie die daraus nach Gl. 2.16-Gl. 2.18 errechnete Reflektivität bei senkrechter Inzidenz dargestellt. Des Weiteren wurde die dielektrische Funktion im Bereich zwischen 0,2 und 4,5 eV mit Hilfe von einem Drudeterm und 3 Lorentzoszillato-

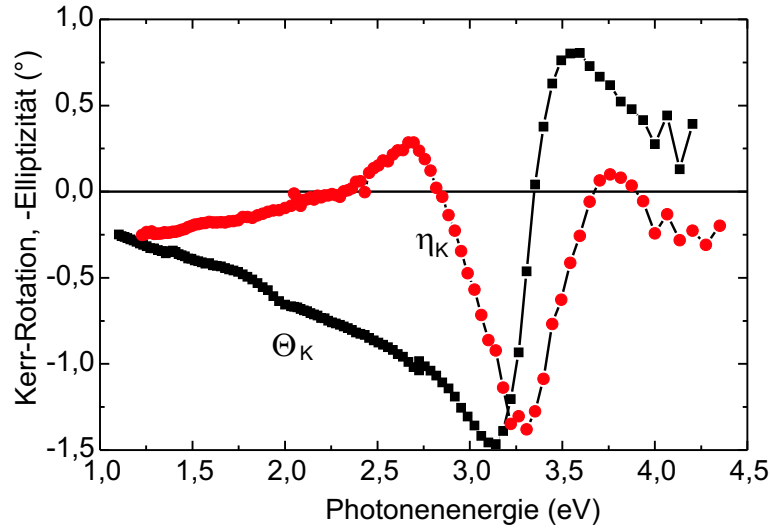


Abb. 6.6: Magnetooptische Kerr-Rotation und -Elliptizität von $U_{0,55}La_{0,45}S$ gemessen bei $T \approx 20$ K sowie $H = 65$ kOe.

ren angepaßt. Das Ergebnis und die verwendeten Anpassungsparameter sind ebenfalls in Abb. 6.7 bzw. in Tab. 6.1 gezeigt.

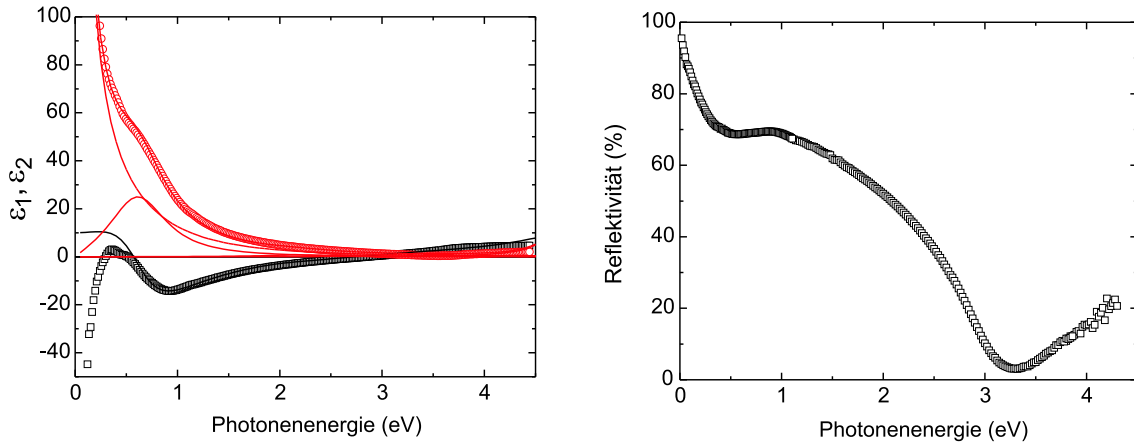


Abb. 6.7: Dielektrische Funktion und Reflektivität bei senkrechter Inzidenz von $U_{0,55}La_{0,45}S$. Die Daten unterhalb 1,1 eV sind mit einem Fourier-Spektrometer aufgenommen worden [60]. ϵ_1 und ϵ_2 sind mit den in Tab. 6.1 angegebenen Daten angefitet worden (durchgezogene Linien). Zusätzlich gezeigt ist die Zerlegung von ϵ_2 in die einzelnen Drude- und Lorentzbeiträge.

Osz.-Nr.	$\hbar\omega_0$ (eV)	Osz.-Stärke	$\hbar\gamma$ (eV)	m^*/m_0
Osz. 1	0,7	0,32	0,7	1
Osz. 2	2,2	0,04	0,9	1
Osz. 3	4,8	0,8	0,45	1
Drudeterm	$N = 2,6 \cdot 10^{28} \text{ m}^{-3}$	$\varepsilon_{opt} = 1,9$	1,2	1,4

Tab. 6.1: Fitparameter für die Anpassung von ε_{1xx} und ε_{2xx} an das gemessene Spektrum von $U_{0,55}La_{0,45}S$. Beim Drude-Term ist statt der Oszillatorenergie die Konzentration der freien Elektronen sowie statt der Oszillatorstärke ε_{opt} angegeben.

Die optischen Messungen an $U_{0,55}La_{0,45}S$ sind ellipsometrisch, unterhalb von 1,1 eV dagegen mit einem Fourierspektrometer [60] aufgenommen worden. Das optische Spektrum zeigt im Infraroten den für Metalle typischen Anstieg des Imaginärteils der dielektrischen Funktion, während der Realteil dort negative Werte annimmt. Eine deutliche Struktur im ε_2 , die auf einen Interbandübergang hindeuten könnte, ist bei ca. 0,7 eV sichtbar. Weiterhin gibt es einen Übergang bei 2,2 eV, der allerdings nur eine sehr geringe Oszillatorstärke besitzt (s. Tab. 6.1). Eine Vernachlässigung dieses Übergangs bringt eine nur geringfügige Verschlechterung des Fits mit sich. Der dritte Oszillator ist eingefügt worden, um den Anstieg von ε_1 und ε_2 , der sich am Rand des Meßbereichs andeutet, zu simulieren. Daraus folgt, daß die Bestimmung der Übergangsenergie in diesem Fall sehr unsicher ist.

Wenn man die spektrale Lage der Interbandübergänge mit denjenigen des US vergleicht, liegt folgende Interpretation der Übergänge nahe:

- Der Übergang bei 0,7 eV entspricht einer Anregung eines $5f$ -Elektrons in einen $6d$ -Zustand.
- Die Struktur bei 2,2 eV kann als Übergang eines $6d$ -Elektrons an der Fermikante in einen leeren $5f$ -Zustand gedeutet werden.
- Die oberhalb 4 eV einsetzenden Übergänge sind als Anregungen aus $3p$ -Zuständen des Schwefels in das leere $6d$ -Band aufzufassen. Da die untersuchte Probe allerdings auch Lanthan enthält, kann es sich dabei allerdings auch um Anregungen von d -Elektronen in leere $4f$ -Zustände des Lanthans handeln, wobei diese jedoch nur eine geringe Oszillatorstärke besitzen.

Diese Deutung basiert auf einer systematischen Untersuchung der optischen und magneto-optischen Eigenschaften verschiedener Uranmonochalkogenide und -pniktide² [93]. Im Uransulfid treten die $f-d$ - sowie die $d-f$ -Übergänge bei höheren Energien auf ($5f-6d$: 1,15 eV, $6d-5f$: 2,85 eV). Die Vergrößerung der Gitterkonstante mit zunehmender Ausdehnung des Chalkogens ($US \rightarrow UTe$) schlägt sich darin nieder, daß die Übergangsenergien abnehmen sowie die $d-f$ -Oszillatorstärke dramatisch abnimmt. Die $f-d$ -Oszillatorstärke bleibt dagegen nahezu unverändert. In den Uranmonopniktiden ist die Oszillatorstärke des $d-f$ -Übergangs auch bei verhältnismäßig kleiner Gitterkonstante ebenfalls deutlich reduziert, da die Besetzung des $6d$ -Bandes dort geringer ist als in den Chalkogeniden [85].

² Die Pniktide sind die Verbindungen mit Elementen der 5. Hauptgruppe.

Dieser Trend wird auch in den optischen Messungen an $U_{0,55}La_{0,45}S$ wiedergegeben. Allerdings sind die Übergänge noch schwächer ausgeprägt als etwa in USe oder UTe , was damit erklärt werden kann, daß der Grad der f -Lokalisierung zusätzlich dadurch erhöht wird, daß durch die Verdünnung mit Lanthan die Zahl der nächsten Uran-Nachbarn verringert wird.

Deutliche Unterschiede zwischen Messung und Anpassung ergeben sich insbesondere im ε_1 im Infrarotbereich. Der Grund dafür wird darin zu suchen sein, daß in der Anpassung im Drude-Term die Dämpfung wie auch die effektive Masse als frequenzunabhängig angenommen wurde. Nach Allen et al. [94] bewirkt jedoch die Komplexität der Streuprozesse, daß in den Gl. 2.13, 2.14 sowohl γ als auch m^* eine Frequenzabhängigkeit erfahren, sobald sich d -Zustände in der Nähe des Fermi-Niveaus befinden. Dies ist auch in den in dieser Arbeit untersuchten $U_xLa_{1-x}S$ -Kristallen der Fall.

Abb. 6.7 zeigt zusätzlich ein Reflektivitätsspektrum von $U_{0,55}La_{0,45}S$. Neben der Struktur nahe 0,7 eV fällt vor allem ein ausgeprägtes Reflexionsminimum bei ca. 3,3 eV auf. Dieses kann damit erklärt werden, daß nahe dieser Energie die (abgeschirmte) Plasmakante $\hbar\omega_p^*$ liegt. Da, wie bereits ausgeführt, in diesem Energiebereich nur sehr schwach ausgeprägte Interbandstrukturen vorhanden sind, ist das Plasmakanten-Reflexionsminimum hier, wie auch beim LaS , sehr gut ausgeprägt.

Diese Beobachtung legt nahe, daß es sich bei der Struktur im Kerr-Spektrum um einen optischen Verstärkungseffekt handelt. Die Gleichungen 2.32-2.34 sowie 2.15 geben den Zusammenhang zwischen der nichtdiagonalen optischen Leitfähigkeit und der Kerr-Rotation bzw. -Elliptizität an. Daraus folgt sogleich, daß - unabhängig von der Größe des Nichtdiagonalelements - insbesondere dann ein großer Kerr-Effekt zu erwarten ist, wenn die Koeffizienten C und D [96]

$$C = \frac{1}{\hbar\omega} \frac{A}{A^2 + B^2} \quad (6.2)$$

$$D = \frac{1}{\hbar\omega} \frac{B}{A^2 + B^2} \quad (6.3)$$

(mit den A und B aus Gl. 2.34) maximal werden. Abb. 6.8 zeigt die aus den optischen Daten berechneten Koeffizienten C und D für $U_{0,55}La_{0,45}S$.

Es ist deutlich zu sehen, daß in der Nähe der Plasmaresonanz stark erhöhte Werte von C und D auftreten. Zusätzlich ist erkennbar, daß die Linienform von C und D denjenigen der Kerr-Rotation und -Elliptizität sehr ähnlich ist. Dies läßt den Schluß zu, daß die dominante Struktur im Kerr-Spektrum in Abb. 6.6 im Wesentlichen auf einen optischen Verstärkungseffekt zurückzuführen ist.

Abb. 6.9 zeigt den Imaginärteil des aus den Ellipsometrie- und Kerr-Spektren über Gl. 2.32-Gl. 2.34 berechneten Nichtdiagonalelements der optischen Leitfähigkeit.

Die Absolutwerte für σ_{2xy} sind über den ganzen Spektralbereich um ca. 1 Größenordnung kleiner als beim US (vgl. Abb. 6.2 b). Der Anstieg von σ_{2xy} zum Infraroten hin kann verschiedene Ursachen haben: Einerseits ist aufgrund der Spinpolarisation ein Beitrag der Leitungselektronen zum Nichtdiagonalelement zu erwarten. Zum anderen wird der bei ca. 0,7 eV liegende Interbandübergang zum magnetooptischen Spektrum beitragen. Der korrespondierende Übergang wurde im Uransulfid mit einer diamagnetischen Linienform angepaßt [88]. Wenn man im $U_{0,55}La_{0,45}S$ ebenfalls einen diamagnetischen Term annimmt,

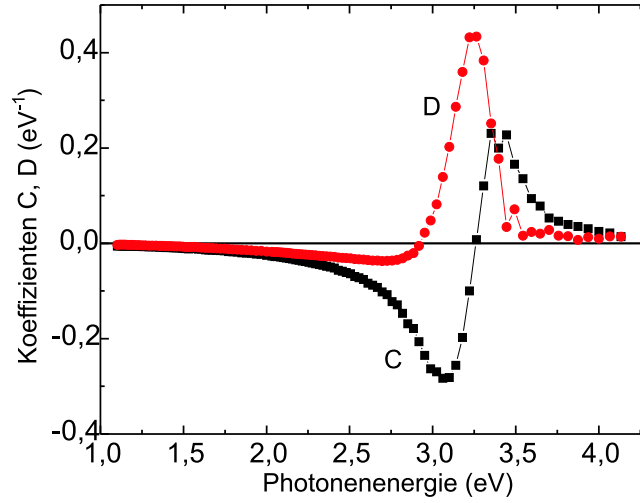


Abb. 6.8: Koeffizienten C und D (nach Gl. 6.2 und 6.3) von $U_{0.55}La_{0.45}S$ aus optischen Daten errechnet.

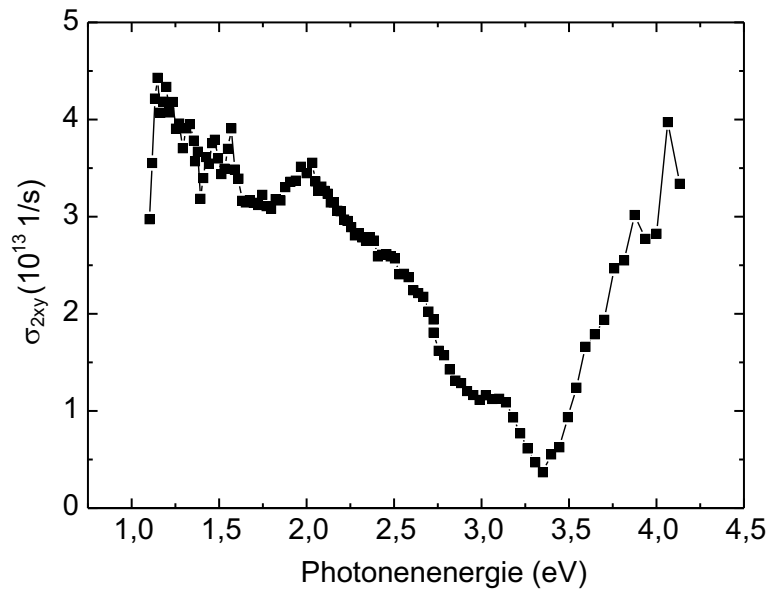


Abb. 6.9: Imaginärteil der nichtdiagonalen optischen Leitfähigkeit.

bekommt man ebenfalls ein Abfallen von σ_{2xy} zu höheren Energien hin.

Dagegen kann der $d - f$ -Übergang bei ca. 2,2 eV, der eine sehr geringe Oszillatorstärke aufweist, erwartungsgemäß auch im magnetooptischen Spektrum nicht klar identifiziert

werden.

Zu hohen Photonenenergien hin findet man dagegen im Unterschied zu US einen deutlichen Anstieg der nichtdiagonalen optischen Leitfähigkeit. Eine derartige Struktur wurde auch im reinen Lanthansulfid gefunden [20] und dort Übergängen in leere $4f$ -Zustände des Lanthans zugeordnet.

Die optische Verstärkung des Kerr-Effekts in der Nähe der Plasmakante ist bereits an vielen anderen Materialien entdeckt worden. Im Rahmen dieser Arbeit erregen natürlich insbesondere Seltenerd (bzw. Aktinid)-Monochalkogenide Aufmerksamkeit, die ebenfalls in der NaCl-Struktur kristallisieren. Sehr ähnliche Strukturen in den Kerr-Spektren wurden beispielsweise im TmS [97] bzw. im NdS [95] gefunden. Das Spektrum des TmS konnte dabei mit Hilfe eines modifizierten Plasmakanten-Modells in hervorragender Weise modelliert werden. Dabei wird für den Leitungselektronen-Beitrag des Nichtdiagonalelements die folgende Beziehung angesetzt:

$$\tilde{\varepsilon}_{\pm} = \frac{Ne^2}{\omega\varepsilon_0} \cdot \frac{1}{-\omega^2 + i\omega\gamma \pm \omega\omega_A} + \varepsilon_{opt}, \quad (6.4)$$

mit $\omega_A := \xi_{SO} \cdot \sigma_d$, wobei ξ_{SO} die Spin-Bahn-Kopplungskonstante und σ_d die Spinpolarisation der freien Elektronen bezeichnet. Abb. 6.10 zeigt neben dem gemessenen ein modelliertes Kerr-Rotations- und -Elliptizitätsspektrum.

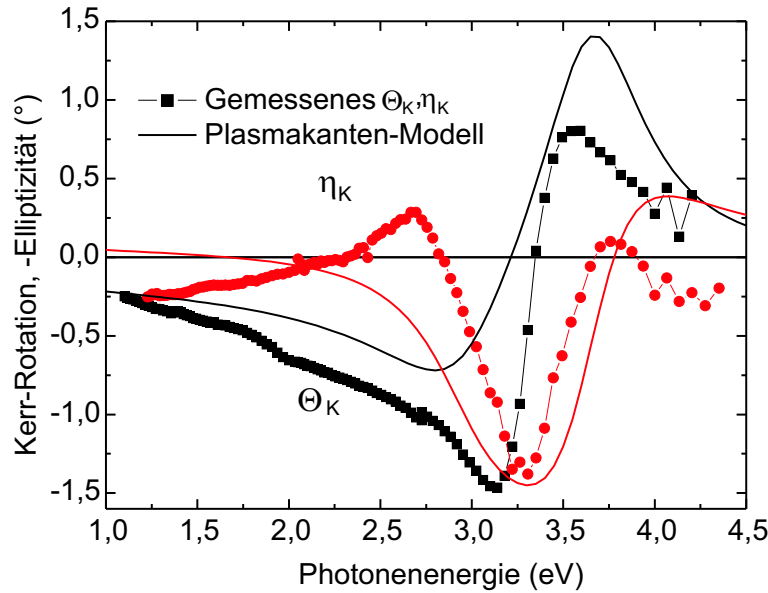


Abb. 6.10: Modell zum Kerr-Effekt an $U_{0,55}La_{0,45}S$ nach Reim et al. [97].

Hierbei wurde $\hbar\omega_p^* = 3,25$ eV, $\hbar\gamma = 0,7$ eV und $\hbar\omega_A = 25$ meV gesetzt. Die Hauptstrukturen werden mit diesem einfachen Modell vernünftig wiedergegeben, während es in den Absolutwerten doch einige Abweichungen gibt. Die Abweichungen können durch das Vorhandensein von Interbandübergängen erklärt werden, die, wie bereits im Zusammenhang mit den optischen Messungen diskutiert, hier bereits im Infrarot-Bereich einsetzen. TmS

dagegen folgt zwischen 0,2 und 2,5 eV weitgehend dem Drude-Zener-Modell.

Um das Kerr-Spektrum von TmS zu erklären, wurde von Antonov et al. die Bandstruktur dieses Materials unter Zuhilfenahme verschiedener Modelle berechnet [98]. Hierbei wurde insbesondere der Lokalisierungsgrad der f -Elektronen variiert. Eine vernünftige Reproduktion des gemessenen Kerr-Spektrums gelang mit Hilfe eines LSDA+U-Modells, in dem ein Teil der $4f$ -Zustände sich in der Nähe des Fermi-Niveaus, die übrigen aber lokalisiert einige eV unterhalb von E_F befinden. Dagegen brachten Rechnungen, die die $4f$ -Elektronen im Atomrumpf (vollständige Lokalisierung) ebenso wie die Annahme der kompletten $4f$ -Zustandsdichte an der Fermikante (itinerantes Modell) keine befriedigende Übereinstimmung mit dem Experiment. Diese Erkenntnisse deuten darauf hin, daß die elektronischen Eigenschaften von $U_{0,55}La_{0,45}S$ mit dem vorgeschlagenen Modell des „*split-off state*“ für die $5f$ -Elektronen (siehe Kap. 4.1.2) näherungsweise beschrieben werden können. Die von Antonov et al. berechneten Bandstrukturen und Kerr-Spektren befinden sich im Anhang.

An dieser Stelle sei angemerkt, daß eine vergleichbare Bandstrukturechnung für $U_xLa_{1-x}S$ sich deswegen erheblich schwieriger gestalten könnte, da es sich im Gegensatz zum TmS um eine Mischkristallverbindung handelt. Aus diesem Grund müßten für die Rechnung sehr viel größere Einheitszellen angenommen werden, um eine annähernd korrekte Stöchiometrie zu bekommen. Des weiteren ist es zu befürchten, daß durch die Wahl der Anordnung der Uran- bzw. Lanthanatome in der Einheitszelle dem System eine Überstruktur aufgezwungen wird, die in der Realität nicht vorhanden ist. Diese kann sich wiederum in unerwünschter Weise auf die zu berechnenden elektronischen Eigenschaften auswirken.

Zum Abschluß soll noch auf die interessante Tatsache hingewiesen werden, daß magnetooptische Messungen an zwei unterschiedlichen UTe-Proben ein völlig unterschiedliches magnetooptisches Kerr-Spektrum zeigen [77]. Das Spektrum auf der rechten Seite von Abb. 6.11 zeigt Strukturen, die, wie oben bereits ausgeführt, auf eine optische Verstärkung durch ein Plasmakanten-Reflexionsminimum schließen lassen. Dagegen läßt die Messung, die links abgebildet ist, eher auf eine Dominanz von Interbandübergängen schließen.

Dies ergibt sich auch daraus, daß die Werte der zu diesem Kerr-Spektrum gehörenden nichtdiagonalen optischen Leitfähigkeit fast halb so groß sind wie diejenigen des Uransulfid. Insbesondere der bei etwa 0,6 eV liegende $5f - 6d$ -Übergang trägt erheblich zum $\tilde{\sigma}_{xy}$ bei.

Die Ursachen für diese Diskrepanz konnten nicht restlos geklärt werden. Reim nahm an, daß leichte Unterschiede in der Gitterkonstante für diese drastische Veränderung der Spektren verantwortlich sind.

6.2.2 $U_{0,8}La_{0,2}S$

Wie Abb. 6.12 zeigt, weicht das Kerr-Spektrum von $U_{0,8}La_{0,2}S$ erheblich von demjenigen von $U_{0,55}La_{0,45}S$ ab. Die Absolutwerte der Drehung und Elliptizität sind deutlich höher ($\Theta_{K,extr} = -2,44^\circ$, $\eta_{K,extr} = -2,60^\circ$, während die resonanzartige Struktur in Θ_K sowie das Maximum in η_K zu höheren Energien hin verschoben sind. Zum anderen bleibt die Kerrdrehung auch im Infrarotbereich betragsmäßig stets größer als 1° . Insgesamt sieht das Spektrum dem des US recht ähnlich, allerdings ist die dort sowohl bei Θ_K als auch bei

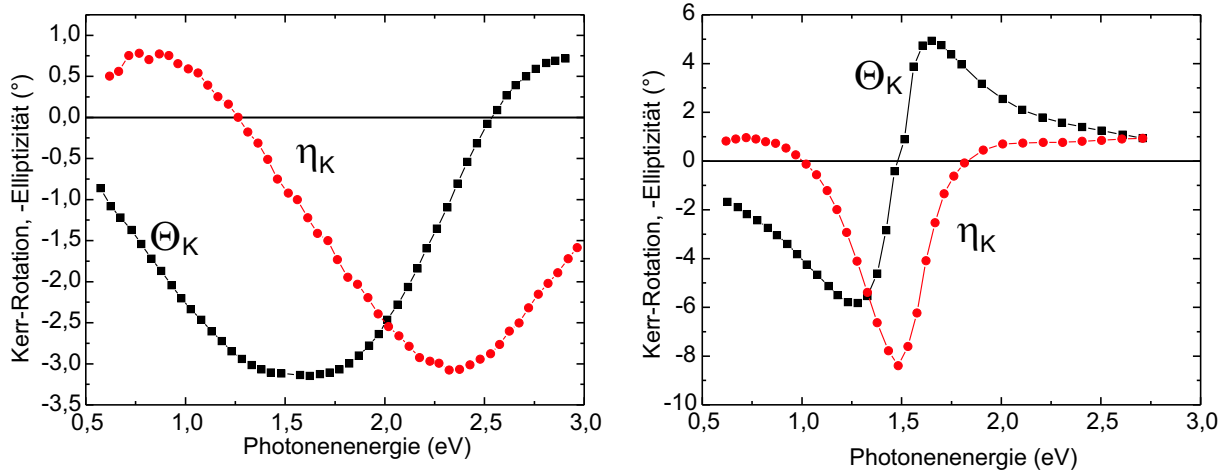


Abb. 6.11: Magnetooptischer Kerr-Effekt an zwei unterschiedlichen UTe-Proben nach [77]. Die Messungen wurden jeweils bei $B = 4$ T und $T = 15$ K aufgenommen.

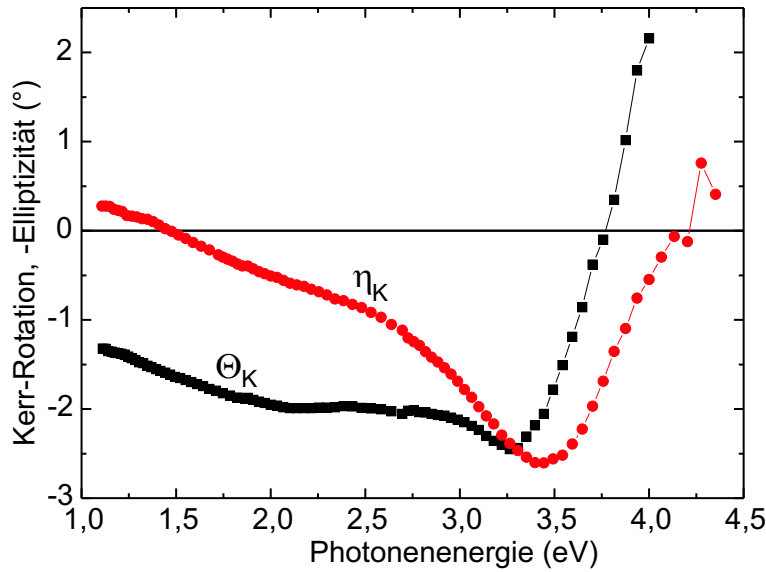


Abb. 6.12: Magnetooptischer Kerr-Effekt an $U_{0.8}La_{0.2}S$ gemessen bei $T \approx 15$ K sowie $H = 33$ kOe.

η_K bei etwa 1,7 eV auftretende Struktur im $U_{0.8}La_{0.2}S$ nur andeutungsweise vorhanden. Um das Kerr-Spektrum zu interpretieren, wird auch hier zunächst wieder ein Blick auf die optischen Eigenschaften des Materials geworfen. Abb. 6.13 zeigt die ellipsometrisch ermittelte dielektrische Funktion sowie das daraus errechnete Reflektivitätsspektrum zwischen 1,1 und 4,3 eV. Auch hier ist ein Minimum in der Reflektivität zu sehen, das von

den freien Ladungsträgern herrührt. Dieses ist allerdings schwächer ausgeprägt als beim $U_{0,55}La_{0,45}S$ und tritt bei höheren Photonenenergien auf.

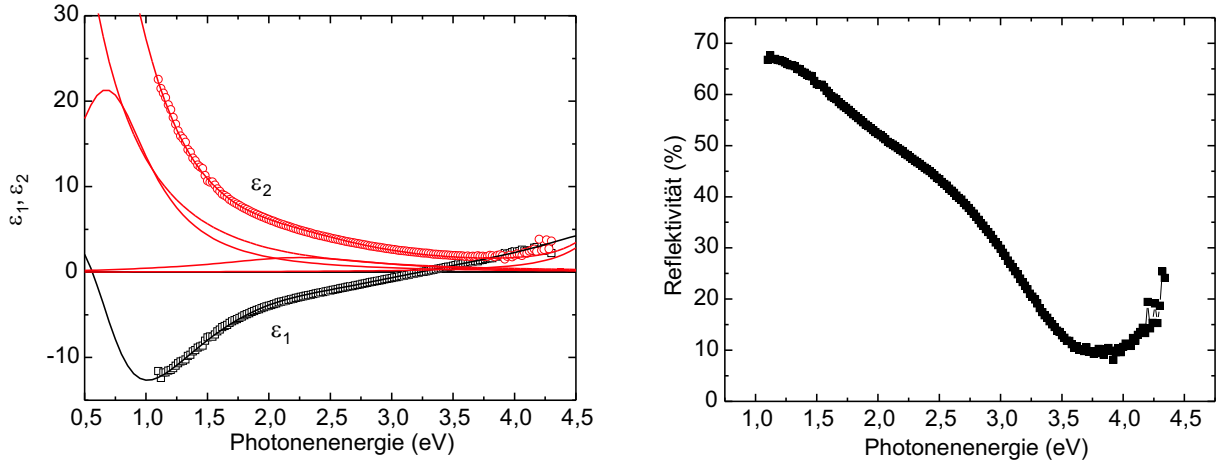


Abb. 6.13: Dielektrische Funktion und Reflektivität bei senkrechter Inzidenz von $U_{0,8}La_{0,2}S$. ε_1 und ε_2 sind mit den in Tab. 6.2 angegebenen Daten angefitet worden (durchgezogene Linien). Zusätzlich gezeigt ist die Zerlegung von ε_2 in die einzelnen Drude- und Lorentzbeiträge.

Die dielektrische Funktion wurde auch hier mit 3 Lorentzoszillatoren und einem Drude-term angefitet. Die Fitparameter sind in Tab. 6.2 gezeigt.

Osz.-Nr.	$\hbar\omega_0$ (eV)	Osz.-Stärke	$\hbar\gamma$ (eV)	m^*/m_0
Osz. 1	0,8	0,38	0,9	1
Osz. 2	2,4	0,18	1,7	1
Osz. 3	4,9	0,6	0,6	1
Drudeterm	$N = 2,7 \cdot 10^{28} \text{ m}^{-3}$	$\varepsilon_{opt} = 1,6$	1,1	1,4

Tab. 6.2: Fitparameter für die Anpassung von ε_{1xx} und ε_{2xx} an das gemessene Spektrum von $U_{0,8}La_{0,2}S$. Beim Drude-Term ist statt der Oszillatorenergie die Konzentration der freien Elektronen sowie statt der Oszillatorstärke ε_{opt} angegeben.

Die Verringerung der Gitterkonstante gegenüber dem $U_{0,55}La_{0,45}S$ wirkt sich auf das optische Spektrum dahingehend aus, daß die Ladungsträgerkonzentration hier leicht erhöht ist, was auch die Verschiebung des Plasmakantenminimums zum Teil erklärt. Die Zahl der Ladungsträger pro Formeleinheit sind beim $U_{0,55}La_{0,45}S$ wie auch beim $U_{0,8}La_{0,2}S$ etwa gleich [59]. Eine Änderung des Plasmakantenminimums kann nach Abb. 2.5 weiterhin durch eine Variation des ε_{opt} , d. h. der im Ultraviolettbereich liegenden Interbandübergänge erzeugt werden. Eine Aussage hierüber ist schwierig, da diese außerhalb des Messbereichs des Institutsellipsometers liegen. Andererseits sind die Absolutwerte von

$\tilde{\varepsilon}$ bzw. R gerade im Ultravioletten stark von der Probenbearbeitung abhängig [99]³. Die Interbandübergangsenergien nehmen gegenüber der stärker verdünnten Probe zu. Insbesondere die Oszillatorstärken der beiden Übergänge im infraroten und sichtbaren Spektralbereich sind zum Teil erheblich höher, vor allem kann der $d-f$ -Übergang hier nicht mehr vernachlässigt werden, wie die Zerlegung des gefitteten ε_2 in die Einzelooszillatoren zeigt. Allerdings bleibt festzuhalten, daß der Effekt der geringen Verdünnung dennoch zu einer erheblich stärkeren Unterdrückung des $d-f$ -Übergangs verglichen mit dem $f-d$ -Übergang führt. Abb. 6.14 zeigt die nach Gl. 6.2 und 6.3 berechneten Koeff-

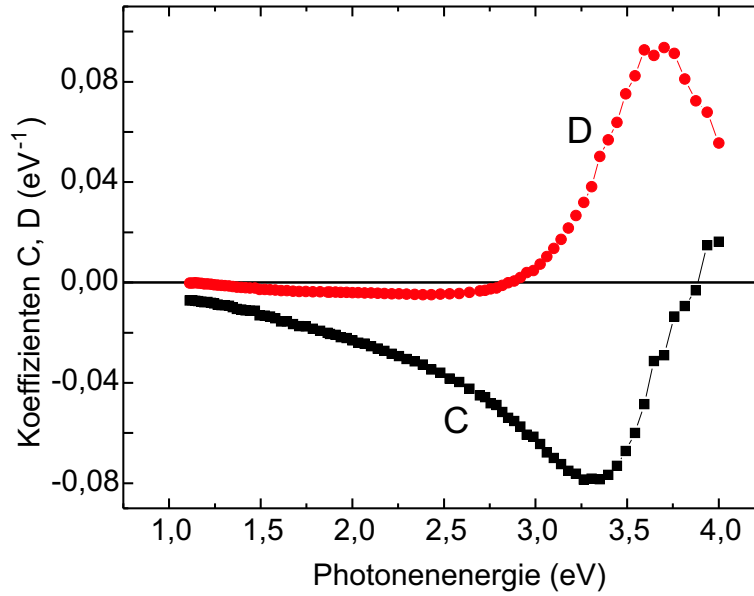


Abb. 6.14: Koeffizienten C und D (nach Gl. 6.2 und 6.3) von $U_{0,8}La_{0,2}S$ aus optischen Daten errechnet.

fizienten C und D für $U_{0,8}La_{0,2}S$. Hier ist wieder deutlich eine Struktur erkennbar, die mit dem Plasmakanten-Reflexionsminimum sowie der resonanzartigen Struktur im Kerr-Rotationsspektrum koinzidiert. Ein Vergleich mit Abb. 6.8 zeigt, daß die Linienform von C und D derjenigen von $U_{0,55}La_{0,45}S$ ähnelt. Daher ist es auch nicht überraschend, daß die Strukturen im Kerr-Spektrum für beide Proben die gleiche Form besitzen. Die absolute Größe von C und D ist im Maximum bei $U_{0,8}La_{0,2}S$ allerdings um einen Faktor 4 geringer als bei $U_{0,55}La_{0,45}S$. Dies hängt damit zusammen, daß das Reflexionsminimum durch Interbandübergänge in diesem Energiebereich weniger stark ausgeprägt ist. Einerseits besitzt, wie bereits dargelegt, der $d-f$ -Übergang für $x = 0,8$ eine deutlich höhere Oszillatorstärke. Andererseits tragen durch die Verschiebung der Plasmakante die Übergänge oberhalb 4 eV ebenfalls zur optischen Leitfähigkeit verstärkt bei. Tab. 6.3 zeigt Gitterkonstanten von verschiedenen $U_xLa_{1-x}S$ -Verbindungen, wobei die Werte aus [59] mittels

³ Beim US ist die Zahl der Ladungsträger pro Formeleinheit nach [59] größer als für $U_{0,55}La_{0,45}S$ oder $U_{0,8}La_{0,2}S$. Dies dürfte der Hauptgrund dafür sein, daß ω_p^* sich bei hohen Urankonzentrationen ($U_{0,8}La_{0,2}S \rightarrow US$, vgl. auch Abb. 6.1) stärker verändert als für niedrigere x ($U_{0,55}La_{0,45}S \rightarrow U_{0,8}La_{0,2}S$)

Verbindung	Gitterkonstante (Å)
US	5,489 [48]
$U_{0,8}La_{0,2}S$	5,560 [59], 5,55 [57]
$U_{0,55}La_{0,45}S$	5,655 [59], 5,72 [57]
LaS	5,853 [91]
USE	5,75 [49]
UTe	6,155 [50]

Tab. 6.3: Vergleich der Gitterkonstanten von $U_xLa_{1-x}S$ mit denen der anderen Uranmonochalkogenide (vgl. Tab. 4.1).

Röntgenbeugung, diejenigen aus [57] dagegen bei Raumtemperatur aus Röntgen- bzw. Neutronenbeugungsmessungen bestimmt wurden. Die nichtdiagonale optische Leitfähig-

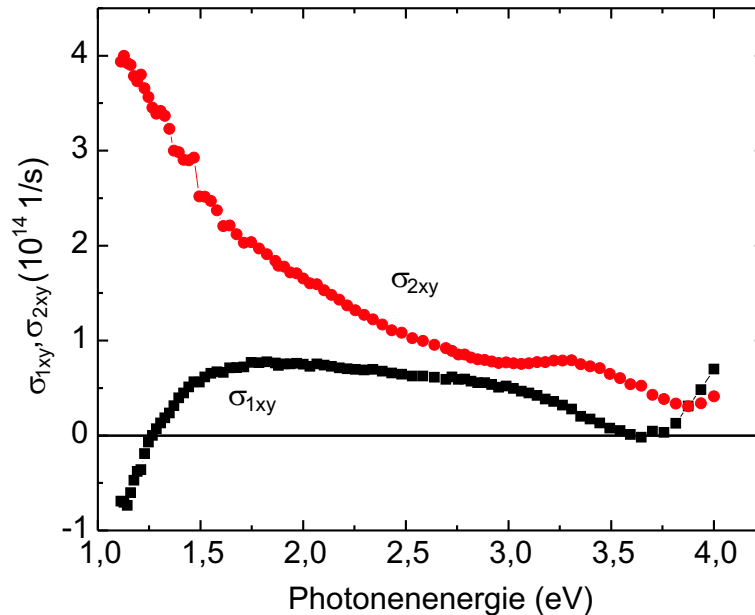


Abb. 6.15: Nichtdiagonalelement der optischen Leitfähigkeit von $U_{0,8}La_{0,2}S$.

keit von $U_{0,8}La_{0,2}S$, dargestellt in Abb. 6.15, ist verglichen mit derjenigen von $U_{0,55}La_{0,45}S$ (siehe Kap. 6.2.1) stark erhöht. Gegenüber dem Uransulfid und auch dem Uranselenid [93] ist dagegen bereits im niedrigen Energiebereich eine Reduktion von σ_{2xy} um etwa einen Faktor 2 zu erkennen.

Die Reduktion von σ_{2xy} ist hier, im Gegensatz z. B. zum System $U_xAs_{1-x}Se$ [77], nicht in erster Linie auf eine Verringerung der Gesamtmagnetisierung zurückführbar, da das magnetische Moment pro Uranatom bei $U_{0,8}La_{0,2}S$ fast die gleiche Größe wie bei US hat und somit nur die magnetische Verdünnung zu einer Reduzierung der Gesamtmagnetisierung führt. Beim $U_{0,55}La_{0,45}S$ ist die Gesamtmagnetisierung zwar ca. um einen Faktor 5 geringer als im US (vgl. Kap. 5, Tab. 5.1), aber auch hier ist die Reduktion von σ_{2xy} noch

erheblich ausgeprägter als von diesem Standpunkt aus zu erwarten wäre.

Ein derartige Verringerung der $f-d$ -Oszillatorstärke in der Magnetooptik konnte auch in UTe im Gegensatz zu den anderen Uranmonochalkogeniden und -pniktiden gefunden werden [77]. Wie Tab. 6.3 zeigt, besitzt UTe von diesen Verbindungen (mit Ausnahme des USb) die mit Abstand größte Gitterkonstante. Dieser Verbindung wird ein weitgehend lokalisiertes Verhalten der $5f$ -Elektronen zugeschrieben, wie aus Photoemissionsmessungen hervorgeht [101]. Für diese Interpretation spricht ebenfalls die bereits in Kap. 6.2.1 dargestellte Tatsache, daß für das UTe zwei verschiedenartige Kerr-Spektren gefunden wurden (Abb. 6.11).

Die Ergebnisse der optischen und magnetooptischen Messungen können dahingehend zusammengefaßt werden, daß in den $U_xLa_{1-x}S$ -Mischkristallen ein deutlich stärkere Lokalisierung vorliegt als im Uransulfid. Hierbei ist der Effekt der magnetischen Verdünnung ausschlaggebend, während die Vergrößerung der Einheitszelle nur von untergeordneter Bedeutung für das f -Elektronen-Verhalten ist.

6.2.3 Verschiebung der Plasmakante von $U_xLa_{1-x}S$ durch Oxidation

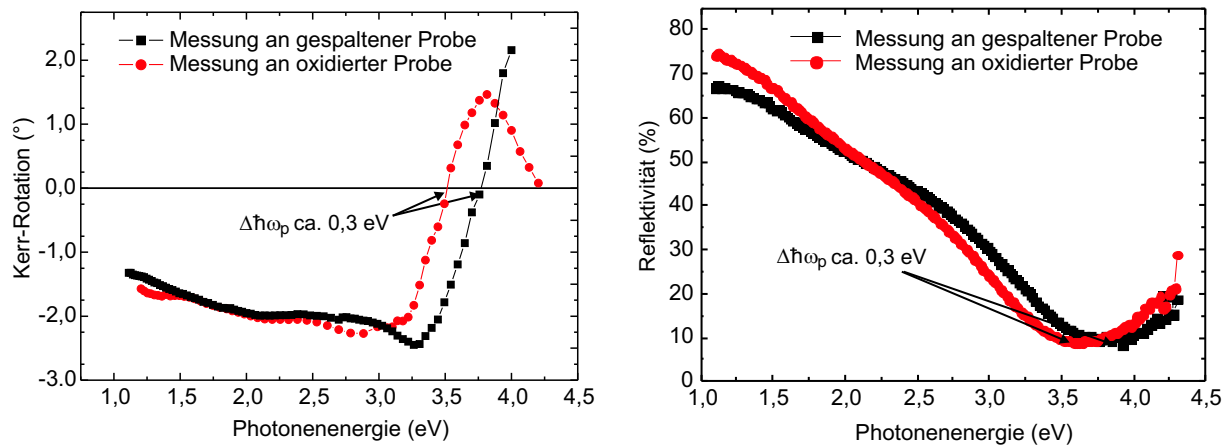


Abb. 6.16: Vergleich der aus ellipsometrischen Daten errechneten Reflektivität sowie der Kerr-Rotationsspektren einer frisch gespaltenen (Quadrate) mit einer oxidierten (Kreise) $U_{0,8}La_{0,2}S$ -Probe.

Im Rahmen dieser Arbeit ist auch untersucht worden, inwieweit sich eine Oxidierung der Oberfläche der $U_xLa_{1-x}S$ -Proben auf die Messungen auswirkt. Dazu sind in Abb. 6.16 die Ergebnisse an einer Probe mit 80 % Uran nach dem Spalten sowie nach ca. 3-monatiger Lagerung derselben Probe an der Umgebungsluft dargestellt. Man erkennt eine leichte Veränderung der (aus ellipsometrischen Daten berechneten) optischen Reflektivität bei niedrigen Energien, die Ursache dafür ist jedoch nicht klar. Im Kerr-Spektrum ergeben sich unterhalb etwa 3 eV nur geringfügige Unterschiede. Der wichtigste Effekt liegt jedoch in der Verschiebung der Plasmafrequenz zu geringeren Energien hin. Dies macht sich im optischen Spektrum durch die Verschiebung des Plasmakanten-Reflektivitätsminimums um

etwa 0,3 eV bemerkbar. Entsprechend beobachtet man in der magnetooptischen Kerr-Rotation eine Verschiebung der resonanzartigen Struktur um denselben Energiebetrag. Diese Tatsache gibt noch einmal einen eindeutigen Hinweis darauf, daß diese Struktur im Kerr-Spektrum durch einen optischen Verstärkungseffekt verursacht wird. Eine derartige, wenn auch schwächer ausgeprägte Änderung der Plasmafrequenz findet man auch in Proben anderer Urankonzentrationen (siehe Abb. 6.17).

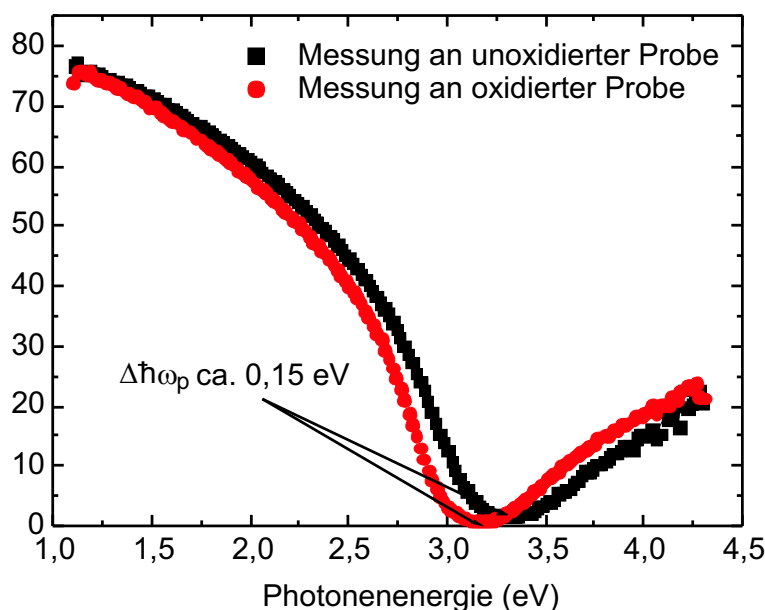


Abb. 6.17: Vergleich der optischen Reflektivität einer nicht oxidierten (Quadrate) mit einer oxidierten (Kreise) $U_{0,55}La_{0,45}S$ -Probe.

Die Ursache für diese Änderung im optischen Verhalten dürfte darin zu suchen sein, daß sich die Ladungsträgerkonzentration durch das Vorhandensein von Lanthanoxidclustern verringert. Eine Auger-Elektronen-Untersuchung (Abb. 6.18) an einer anderen Probe ($U_{0,3}La_{0,7}S$) läßt die bevorzugte Ausbildung von Lanthanoxid an der Probenoberfläche vermuten⁴. Daneben sind auch Kohlenstofflinien zu erkennen. Erst nach einem Sputtern der Probe können auch Uran und Schwefel nachgewiesen werden. Der Sauerstoffpeak dagegen verschwindet auch nach einer längeren Sputterdauer nicht.

Weiterhin wurden zum Vergleich ellipsometrische Messungen an der gleichen Probe vor und nach dem Sputtern durchgeführt, die tatsächlich erhebliche Änderungen im optischen Spektrum zeigen. Allerdings sind die dabei erzielten Ergebnisse mit einiger Vorsicht zu behandeln, da der Sputterprozeß zwar das Oxid abträgt, dabei aber die Beschaffenheit der

⁴ Zur Nomenklatur bei der Auger-Spektroskopie: Der erste der drei Buchstaben nach der Elementbezeichnung gibt die Schale an, aus der das Elektron entfernt wurde. Der freiwerdende Platz wird durch ein Elektron aus einem höheren Energieniveau aufgefüllt (zweiter Buchstabe). Der dritte Buchstabe schließlich bezeichnet die Schale des ausgesendeten Auger-Elektrons.

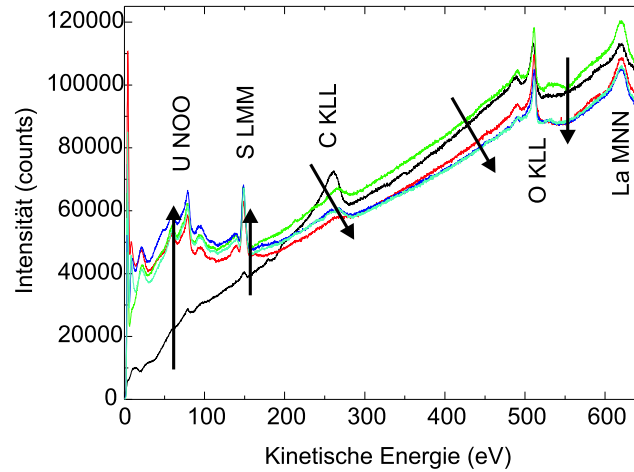


Abb. 6.18: Auger-Elektronen-Spektroskopie an $U_{0,3}La_{0,7}S$ während des Absputterns der Probe. Die Pfeile geben vereinfacht die Entwicklung des Spektrums mit zunehmender Sputterzeit an.

Oberfläche verändert wird und zum anderen eine Verunreinigung durch die Sputterionen nicht ausgeschlossen werden kann.

7. Magnetooptische Untersuchungen an MnPt_3 und CrPt_3

Die magnetooptischen Eigenschaften von intermetallischen XPt_3 -Verbindungen ($X = \text{V}, \text{Fe}, \text{Mn}, \text{Cr}, \text{Co}$) sind bereits in der Vergangenheit Gegenstand zahlreicher experimenteller wie auch theoretischer Studien gewesen. 1983 untersuchten Buschow et al. [102] die magnetooptische Kerr-Rotation von MnPt_3 -Einkristallen bei zwei verschiedenen Lichtwellenlängen und fanden keinen meßbaren magnetooptischen Effekt. Dagegen wurde von Brändle et al. [103] eine extremale Kerr-Rotation von $-0,12^\circ$ gemessen. Kerr-Rotations- und Elliptizitäts-Spektren mit erheblich größeren Drehwinkeln wurden später von Kato et al. [104] an (111)-orientierten, epitaktischen Filmen ($\Theta_{K,extr} = -1,18^\circ$) sowie von Vergöhl et al. [105] an Bulkproben ($\Theta_{K,extr} = -0,55^\circ$) gefunden¹. Die letztgenannten Autoren wiesen darüber hinaus anhand von verschiedenen Ätzprozeduren nach, daß die gemessene Kerrdrehung empfindlich von der Probengeschichte abhängt. Somit lassen sich auch die erheblichen Unterschiede in der absoluten Größe der publizierten Werte verstehen. Noch etwas höhere Absolutwerte für Θ_K und η_K wurden an polykristallinen MnPt_3 -Filmen angegeben, wobei aber die Kerr-Spektren durch eine dünne SiO_x -Deckschicht gemessen wurden. Dadurch wurde die Ermittlung der intrinsischen Drehung mit Hilfe eines Vielschicht-Modells nötig [106].

CrPt_3 wird dagegen erst seit relativ kurzer Zeit magnetooptisch untersucht. Die ersten veröffentlichten Spektren an Bulkmaterial [105] sowie an polykristallinen [107] und epitaktisch hergestellten [108] Filmen zeigten einen sehr ähnlichen Verlauf wie diejenigen von MnPt_3 , jedoch erheblich geringere Absolutwerte von Θ_K sowie η_K .

Durch die Entwicklung immer leistungsfähigerer Rechner ist in zunehmendem Maße möglich geworden, wirklichkeitsnahe Bandstrukturechnungen anzufertigen, mit deren Hilfe der Tensor der optischen Leitfähigkeit und damit auch die optischen Konstanten sowie die magnetooptische Kerr-Rotation bzw. Elliptizität über einen weiten Energiebereich berechnet werden können. Insbesondere die Untersuchungen von Oppeneer mit Hilfe der Dichtefunktionaltheorie in der *local spin density approximation* (LSDA) haben eine Erweiterung des Verständnisses des Kerr-Effekts insbesondere der XPt_3 -Verbindungen gebracht. Einzelheiten zu den Rechenmethoden sind z. B. in [109] und in [110] zu finden.

Der Hauptteil dieses Kapitels beschäftigt sich mit den optischen und magnetooptischen Eigenschaften dünner $\text{Mn}_x\text{Pt}_{1-x}$ - und $\text{Cr}_x\text{Pt}_{1-x}$ -Filme. Die Kerr-Messungen an diesen Verbindungen wurden bei Raumtemperatur mit dem Nullabgleich-Spektrometer (vgl. Kap. 3.2) durchgeführt. Hierbei wird insbesondere auf die Abhängigkeit dieser Größen von verschiedenartigen Herstellungsparametern (z. B. Stöchiometrie, Filmdicke, chemi-

¹ Die Proben von Kato wurden durch das Quarzsubstrat hindurch gemessen. Die intrinsische Kerr-Drehung ist daher aufgrund des Interface-Effektes um den Faktor $n_{\text{Quarz}} \approx 1,4$ kleiner als die publizierten Werte.

sche Ordnung u. a.) eingegangen. Weiterhin wird versucht, anhand der Spektren eine Brücke zu den elektronischen Eigenschaften dieser Verbindungen zu schlagen.

7.1 $MnPt_3$

7.1.1 Diskussion des Kerr-Spektrums von $MnPt_3$

In Abb. 7.1 ist das magnetooptische Kerr-Spektrum eines epitaktischen $Mn_{0,27}Pt_{0,73}$ -Films gezeigt. In der Kerr-Rotation sind zwei Strukturen dominant: Ein ausgeprägtes Minimum bei 1,1 eV ($\Theta_K = -0,65^\circ$) sowie ein breiteres Maximum im Ultraviolettbereich ($\Theta_K = 0,2^\circ$ bei 3,3 eV). In der Kerr-Elliptizität tritt ein breites Minimum von $\eta_K = -0,48^\circ$ bei 2,1 eV hervor, während im Infrarotbereich ein Nulldurchgang auftritt. Ferner ist noch ein schwach ausgeprägtes Maximum bei etwa 3,9 eV zu erkennen.

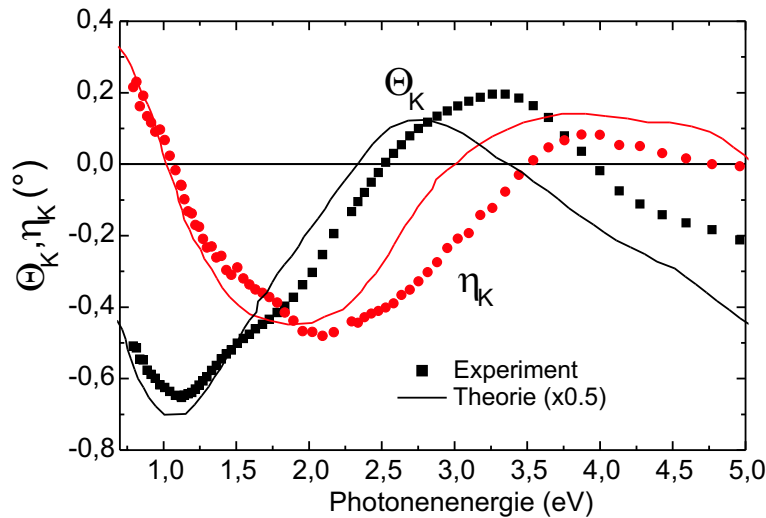


Abb. 7.1: Magnetooptische Kerr-Rotation und -Elliptizität von $Mn_{0,27}Pt_{0,73}$. Zum Vergleich: Kalkuliertes Kerr-Spektrum von $MnPt_3$ nach Oppeneer et al. [111]. Das berechnete Spektrum ist zum besseren Vergleich um den Faktor 2 gestaucht.

Eine Möglichkeit der Interpretation von magnetooptischen Spektren besteht im Vergleich mit Bandstrukturechnungen. Aus diesen kann der Tensor der DK und damit auch Θ_K , η_K sowie die optischen Eigenschaften berechnet werden. Zum Vergleich mit dem Experiment ist ein von Oppeneer et al. [111] berechneter Verlauf von Θ_K und η_K dargestellt. Dieses zeigt in der Linienform eine sehr gute Übereinstimmung mit dem Experiment. Die Positionen der Maxima und Nulldurchgänge ist meist zu kleineren Energien hin verschoben. Die errechnete Kerrdrehung und -Elliptizität ist etwa doppelt so groß wie die experimentell ermittelte. Die Ursache hierfür kann in einer Reduktion der Probenmagnetisierung durch die nicht exakte Stöchiometrie liegen [47], die sich entsprechend auf den magnetooptischen Kerr-Effekt auswirkt (vgl. Kap. 7.1.2). Zum anderen wird in der Theorie von $T = 0$ K und

damit von einer Magnetisierung ausgegangen, die etwa um einen Faktor 1,3 gegenüber $M(300\text{ K})$ erhöht ist.

Einen Einblick in die Ursache des großen Kerr-Signals bekommt man, wenn in den Rechnungen einzelne Parameter (wie z. B. die Spin-Bahn-Kopplung) gezielt variiert werden, um ihren Einfluß auf das Kerr-Spektrum herauszufinden. Das Verfahren ist in [109] sehr instruktiv dargestellt. Das Ergebnis der Rechnungen kann wie folgt zusammengefaßt werden:²

- Der große Kerr-Effekt in MnPt_3 entsteht durch das Zusammenspiel der Austauschspaltung des Mangans mit der Spin-Bahn-Kopplung des Platins.
- Magnetooptisch aktiv sind im wesentlichen die Interbandübergänge zwischen d - und p -Zuständen des Platins. Die entsprechenden Übergänge an den Manganplätzen sowie $d - f$ - bzw. $s - p$ -Übergänge beeinflussen das Kerr-Spektrum nur geringfügig.
- Eine Vergrößerung der Austauschspaltung des Mangans bringt eine Blauverschiebung der Strukturen im Kerr-Rotationsspektrum mit sich, während die Variation der Spin-Bahn-Kopplung des Platins fast ausschließlich zu einer Änderung der Absolutwerte führt. Eine Änderung dieser Parameter in der Rechnung könnte somit zu einer erheblich besseren Übereinstimmung mit dem Experiment führen.

In verschiedenen Arbeiten [106, 112, 113] wird auch eine berechnete spinpolarisierte Zustandsdichte von MnPt_3 angegeben, die u. a. zwischen p - und d -Zuständen unterscheidet. Sie zeigt eine stark ausgeprägte Spinpolarisation der $3d$ -Zustände des Mangans und durch Hybridisierung ebenfalls eine Spinpolarisation der Platin- $5d$ -Zustände. Diese geben den Hauptbeitrag zur Zustandsdichte am Fermi-Niveau. Die Mn-spin-up -Zustände sind im Bereich zwischen 0 und 4 eV unterhalb E_F , die spin-down -Zustände dagegen oberhalb des Fermi-Niveaus ab 1 eV konzentriert. Anders liegen die Dinge bei den Platin- d -Zuständen. Hier liegen die Valenzbandzustände für beide Spinrichtungen bis zu 8 eV unterhalb E_F . Eine Polarisation der Bänder tritt hauptsächlich in der Nähe der Fermikante auf. Abb. 7.2 zeigt die Einzel-Zustandsdichten der verschiedenen Zustände.

Eine Verifizierung der theoretischen Vorhersagen für die Zustandsdichte ist mit Hilfe von Photoemissionsmessungen möglich. So haben Borgschulte et al. [114] gezeigt, daß eine Struktur im UPS-Spektrum von MnPt_3 bei 6 eV eindeutig Pt-artigen Zuständen zuzuordnen ist, während eine andere bei ca. 2-3 eV eher auf eine Hybridisierung zwischen Mn- und Pt-Zuständen hindeutet. Diese Ergebnisse deuten darauf hin, daß die Bandstrukturrechnungen, die eine nur geringe Mn-Zustandsdichte unterhalb -4 eV zeigen (Abb. 7.2), zumindest einen richtigen Trend wiedergeben.

Zusammenfassend läßt sich sagen, daß die spinpolarisierten Zustandsdichten somit die Annahme von Oppeneer bestätigen, daß die magnetooptisch aktiven Übergänge im Wesentlichen den d -Zuständen des Platins zuzuordnen sind. Denkbar ist z. B. eine Anregung von Pt- d -Minoritätsladungsträgern am Fermi-Niveau in den p -Zustand etwa 1 eV oberhalb E_F bzw. vom Pt- p -Niveau ca. 1 eV unterhalb E_F in den leeren d -Zustand.

² Die Variation der Parameter wurde am Beispiel von CrPt_3 durchgeführt, gilt aber sinngemäß auch für die anderen magnetisch ordnenden XPt_3 -Verbindungen.

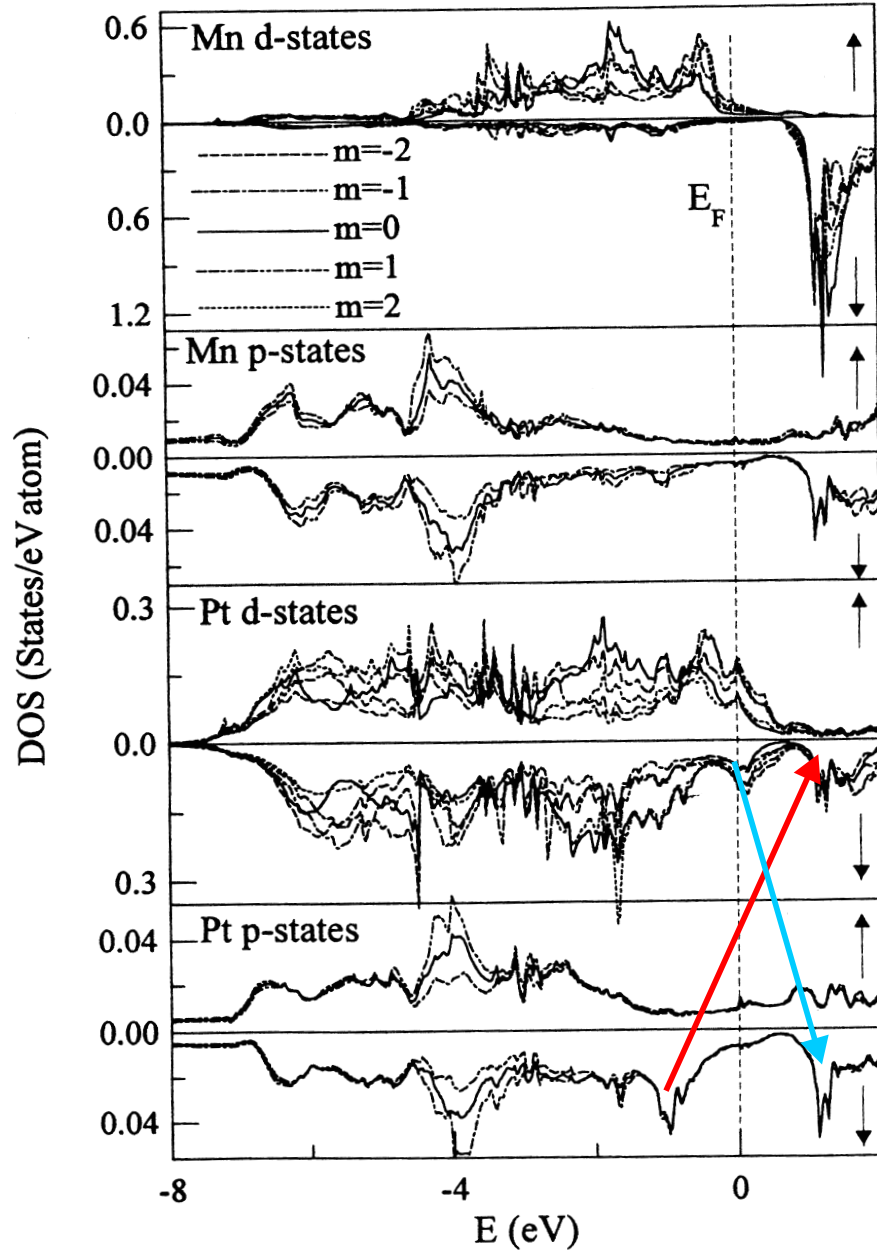


Abb. 7.2: Spinpolarisierte Zustandsdichten der Mn- bzw. Pt- d - und p -Zustände in MnPt_3 (aus [106]). Die Pfeile markieren mögliche Interbandübergänge im Spektralbereich unterhalb 3 eV.

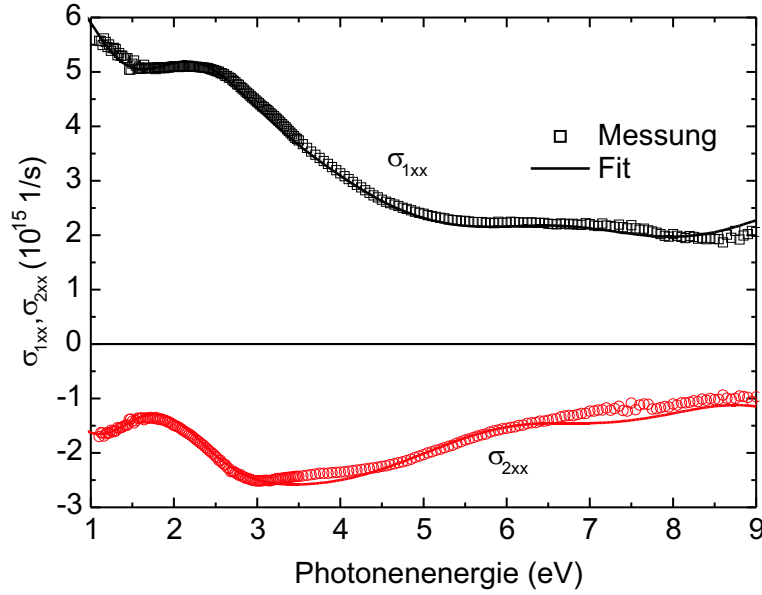


Abb. 7.3: Diagonale optische Leitfähigkeit einer MnPt_3 -Probe im Bereich zwischen 1 und 9 eV. Durchgezogene Linien: Fits von σ_{1xx} und σ_{2xx} mit den in Tab. 7.1 angegebenen Parametern.

Osz.-Nr.	$\hbar\omega_0$ (eV)	Osz.-Stärke	$\hbar\gamma$ (eV)
Osz. 1	1,0	0,31	1,3
Osz. 2	2,4	1,2	2,5
Osz. 3	3,9	0,3	3,0
Osz. 4	6,8	0,5	3,5
Osz. 5	9,8	0,75	3,0
Drudeterm	$N = 4,2 \cdot 10^{28} \text{ m}^{-3}$	-	0,85

Tab. 7.1: Fitparameter für die Anpassung von σ_{1xx} und σ_{2xx} . Beim Drude-Term ist statt der Oszillatorenergie die Konzentration der freien Elektronen angegeben. Die effektive Elektronenmasse wurde in allen Fällen gleich der Ruhemasse m_0 gesetzt.

In Abb. 7.3 ist die optische Leitfähigkeit der $\text{Mn}_{0,27}\text{Pt}_{0,73}$ -Probe gezeigt. Die Daten oberhalb 4 eV wurden an einem Vakuum-UV-Ellipsometer [115] am Berliner Elektronenspeicherring (BESSY) aufgenommen. Auffällig ist insbesondere eine ausgeprägte Schulter im σ_{1xx} bei ca. 2,5 eV in einem ansonsten wenig strukturierten Spektrum. An polykristallinen MnPt_3 -Filmen wurden sehr ähnliche optische Spektren bei allerdings geringeren Absolutwerten von σ_{1xx} gefunden, die auf den Einfluß von Oxidschichten bzw. Oberflächenrauigkeiten zurückgeführt werden [113]. Eine Anpassung an das optische Spektrum wurde mit einem Drudeterm und 5 Lorentzoszillatoren vorgenommen. Die Fitparameter sind in Tab. 7.1 aufgeführt.

Ein Interbandübergang ist insbesondere dort zu erwarten, wo eine *Van-Hove-Singularität* in der Zustandsdichte auftritt [116]. Dieses bedeutet, daß die Bänder des Anfangs- und

Endzustandes entweder in einem gewissen Bereich der Brillouinzone parallel sind oder am selben Punkt im k -Raum ein Extremum besitzen:

$$\nabla_{\underline{k}} E_C(\underline{k}) - \nabla_{\underline{k}} E_V(\underline{k}) = 0. \quad (7.1)$$

E_C, E_V bezeichnen Energieniveaus im Leitungs- bzw. Valenzband.

Eine eindeutige Zuordnung der Übergänge zu bestimmten Anfangs- und Endzuständen im k -Raum ist angesichts der Komplexität der Bandstruktur von MnPt_3 (Abb. 7.4) nicht ohne weiteres möglich. Vielmehr ist es so, daß es sich bei den in Tab. 7.1 aufgeführten Oszillatoren jeweils um eine Überlagerung von *mehreren* Interbandübergängen handelt. Das $E(k)$ -Diagramm zeigt, daß es viele aufgespaltene Bänder gibt, die weitgehend parallel verlaufen und energetisch nur geringfügig voneinander getrennt sind. Dafür spricht auch, daß der Lebensdauer-Verbreiterungsparameter γ für alle Übergänge sehr groß ist (mehrere eV).

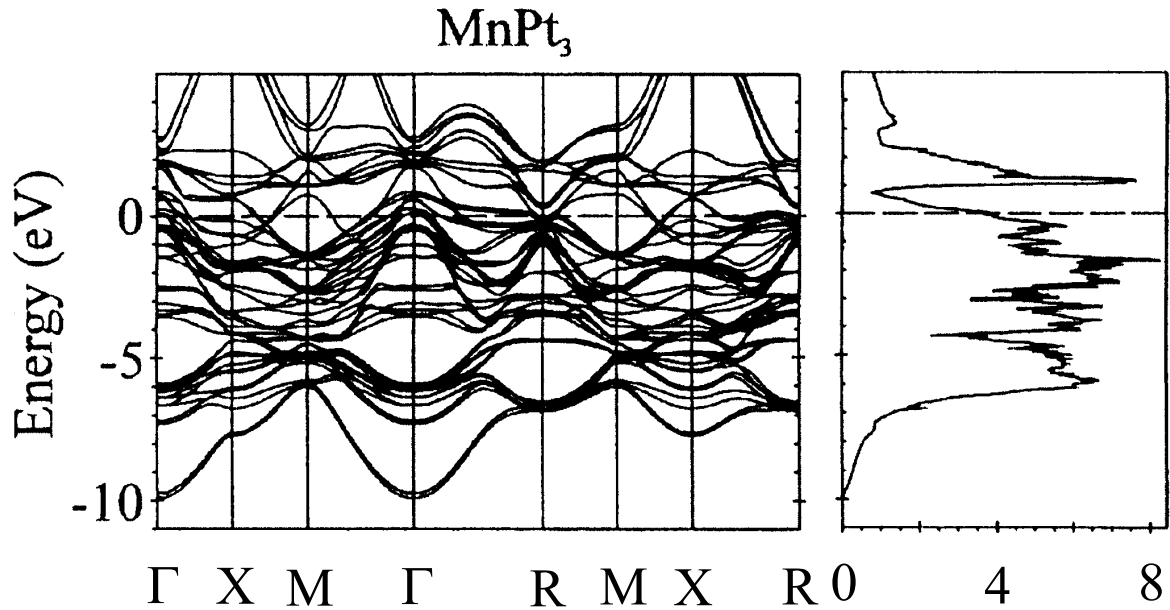


Abb. 7.4: Bandstruktur (links) und Gesamt-Zustandsdichte (rechts) von MnPt_3 aus LSDA-Rechnungen. Die Buchstaben Γ , R, M und X markieren die Hochsymmetriepunkte der Brillouinzone. Aus [111].

Das Nichtdiagonalelement von MnPt_3 läßt sich nach Gl. 2.49 und Gl. 2.50 ebenfalls mit analytischen Linienformen anfiten. Das Ergebnis ist in Abb. 7.5 dargestellt, wobei die in Tab. 7.2 aufgestellten Fitparameter verwendet wurden. Die einzelnen Beiträge des Intrabandterms sowie der Lorentzoszillatoren zeigt Abb. 7.6. Ein Vergleich dieser Parameter mit denjenigen aus dem optischen Fit zeigt, daß der Großteil der optisch aktiven Übergänge auch zum magnetooptischen Signal beiträgt. Wie aus Abb. 7.6 und Tab. 7.2 hervorgeht, kann der Übergang bei 1,1 eV mit einer paramagnetischen, der Übergang

bei 2,4 eV jedoch mit einer diamagnetischen Linienform angepaßt werden. Dieser Unterschied gibt Anlaß zu der Annahme, daß die erstgenannte Struktur einen polarisierten, d -artigen Anfangszustand nahe des Fermi-niveaus besitzt. Der Übergang bei 2,4 eV kann dagegen als Übergang von einem unpolarisierten p - in einen d -Zustand aufgefaßt werden. Die möglichen Übergänge sind in Abb. 7.2 durch Pfeile dargestellt. Für diese Annahme spricht auch der Beitrag der Leitungselektronen zum Nichtdiagonalelement, der auf eine teilweise Spinpolarisation schließen läßt.

Da die Plasmafrequenz, die Spin-Bahn-Kopplung und die Spinpolarisation der Leitungselektronen jedoch, wie bereits in Kap. 2.2 beschrieben, jeweils linear zum Drude-Anteil des Nichtdiagonalelements beitragen, sind die für den Drudeterm angegebenen Werte mit besonderer Vorsicht zu betrachten. Jedenfalls ist eine analytische Anpassung optischer und magnetooptischer Spektren mit Hilfe des Drude-Zener- bzw. des Lorentzmodells zwar hilfreich, stellt jedoch zu einer Interpretation im Rahmen von Bandstrukturechnungen keine vollwertige Alternative dar.

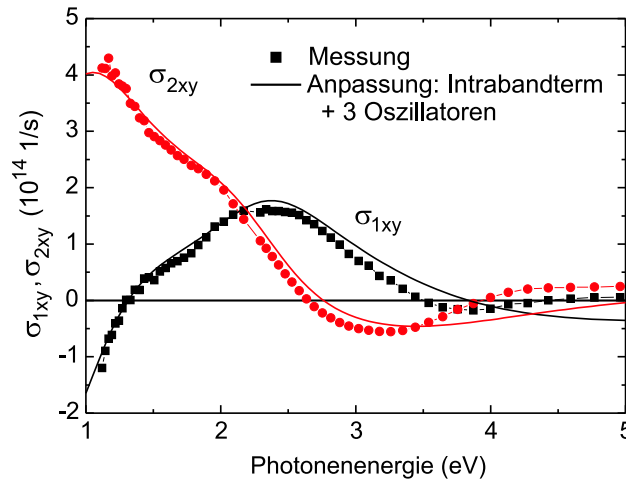


Abb. 7.5: Aus Θ_K , η_K und $\tilde{\sigma}_{xx}$ berechnetes Nichtdiagonalelement der optischen Leitfähigkeit einer MnPt_3 -Probe. Durchgezogene Linie: Fit von σ_{1xy} und σ_{2xy} mit den in Tab. 7.2 angegebenen Parametern.

7.1.2 Konzentrationsabhängigkeit der magnetooptischen Effekte

Abb. 7.7 zeigt die magnetooptische Kerr-Rotation von $\text{Mn}_x\text{Pt}_{1-x}$ -Schichten verschiedener Mangankonzentration. Alle Proben sind epitaktisch auf (001)-orientierten SrTiO_3 -Substraten gewachsen worden und besitzen eine nominelle Dicke von 37,5 nm.

Die höchste Kerr-Drehung tritt bei derjenigen Probe auf, deren Mangananteil x am

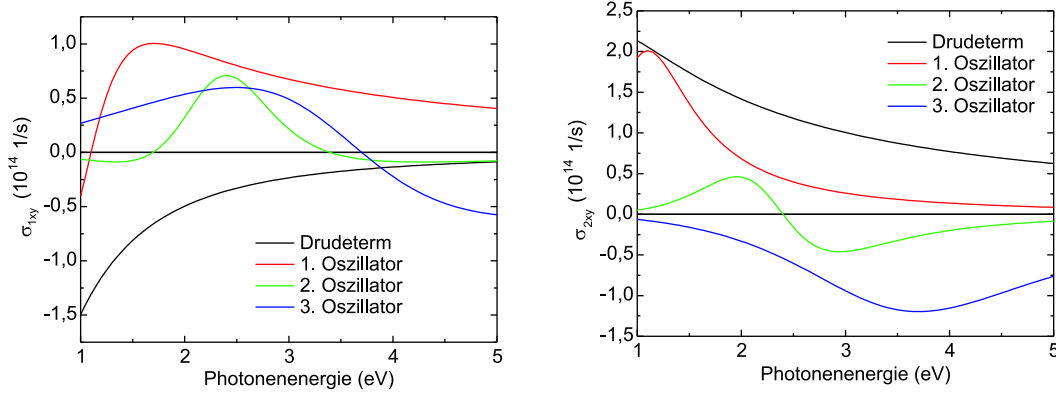


Abb. 7.6: Darstellung der Beiträge des Intrabandterms sowie der Einzeloszillatoren zur nicht-diagonalen optischen Leitfähigkeit von MnPt_3 .

Os.-Nr.	$\hbar\omega_0$ (eV)	f^+	f^-	$\hbar\gamma$ (eV)	$\hbar\omega_{cj}$ (eV)
Os. 1	1,1	0,193	0,250	1,0	0
Os. 2	2,4	0,651	0,651	1,7	0,045
Os. 3	3,4	0,153	0,051	3,0	0
Drudeterm	-	$N = 4,2 \cdot 10^{28} \text{ m}^{-3}$	0,7	$\hbar P_0 / ev_0 = -0,65 \text{ eV}$	$\sigma_{cond} = 0,1$

Tab. 7.2: Fitparameter für die Anpassung von σ_{1xy} und σ_{2xy} . Beim Drude-Term ist statt der Oszillatorenergie die Konzentration der freien Elektronen angegeben, außerdem das Verhältnis von Dipolmoment P_0 und Fermigeschwindigkeit v_0 (siehe Kap. 2.2.4) sowie die Spinpolarisation der Leitungselektronen σ_{cond} . Die effektive Elektronenmasse wurde in allen Fällen gleich der Ruhemasse m_0 gesetzt.

nächsten bei 25 % liegt. Die spektrale Lage von Strukturen und Nulldurchgängen in den Kerrspektren ändert sich mit der Konzentration nicht signifikant.

Die Abnahme der Drehung mit der Konzentration zu kleinen Konzentrationen hin ist wesentlich größer als mit zunehmendem x , was am Vergleich von $\text{Mn}_{0,32}\text{Pt}_{0,68}$ mit $\text{Mn}_{0,2}\text{Pt}_{0,8}$ erkennbar wird. Dies ist in Übereinstimmung mit Werten der Sättigungsmagnetisierung aus SQUID-Magnetisierungsmessungen an denselben Proben [47]. Verstärkt wird dieser Effekt hier noch dadurch, daß die Messungen bei Raumtemperatur durchgeführt wurden. Die Curie-Temperatur nimmt mit zunehmendem Mangananteil zu und liegt bei $x = 0,2$ nur knapp oberhalb Raumtemperatur [67]. Deswegen ist die erreichbare Sättigungsmagnetisierung bei Raumtemperatur gegenüber dem Wert für $T = 10 \text{ K}$ bei geringem x stärker vermindert als bei hohen Mangankonzentrationen.

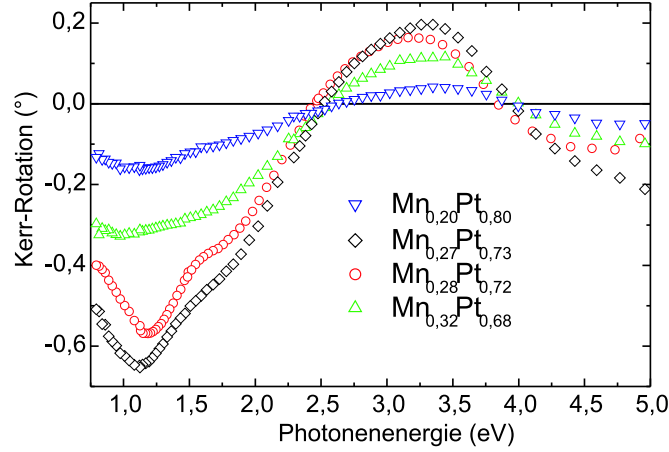


Abb. 7.7: Magnetooptische Kerr-Rotation von $\text{Mn}_x\text{Pt}_{1-x}$ -Proben mit unterschiedlicher Mangankonzentration.

7.2 CrPt_3

In der vorliegenden Arbeit wurden neben $\text{Mn}_x\text{Pt}_{1-x}$ -Proben auch eine Reihe $\text{Cr}_x\text{Pt}_{1-x}$ -Proben bezüglich ihrer optischen und magnetooptischen Eigenschaften untersucht. Ein typisches Kerr-Spektrum einer Probe mit $x \approx 0,25$ ist in Abb. 7.8 gezeigt.

Der Verlauf des Spektrums ähnelt stark denjenigen, die aus der Literatur bereits bekannt sind. Der Extremalwert der Kerr-Rotation beträgt etwa $-0,5^\circ$ am niederenergetischen Rand des verfügbaren Spektralbereichs. Das absolute Minimum von Θ_K konnte in diesem Falle nicht ermittelt werden. Zusätzlich findet man ein Maximum von $0,25^\circ$ im nahen Ultraviolett bei etwa 3,2 eV und eine weitere, schwächer ausgeprägte Struktur bei etwa 4,3 eV. Letztere wird beim MnPt_3 nicht gefunden, während ansonsten die spektralen Verläufe von Θ_K sehr ähnlich sind. Die Kerr-Elliptizität ist dominiert durch ein ausgeprägtes Minimum bei ca. 2,2 eV.

Auch für das CrPt_3 gibt das berechnete Kerr-Spektrum [111] die experimentell ermittelten Strukturen gut wieder, insbesondere zeigen die Rechnungen auch den Rotations-Doppelpeak im Ultraviolettbereich. Die Rechnungen ergeben für das CrPt_3 eine geringere Amplitude des Kerr-Signals als für MnPt_3 . Dieses kommt daher, daß - bei ähnlicher Bandstruktur - das magnetische Moment im Mn deutlich größer ist als im Cr [68, 69] (siehe Kap. 4.2). Die unterschiedlichen Größen der Momente rühren daher, daß im MnPt_3 die *spin-up*-Zustände des Mn-3d-Bandes weitgehend besetzt sind (vgl. auch Abb. 7.2), während im CrPt_3 noch eine größere Anzahl *spin-up*-Löcher vorhanden ist (Elektronenkonfiguration Mn: $[\text{Ar}] 4s^2 3d^5$, Cr: $[\text{Ar}] 4s^2 3d^4$). Dieses führt im letzteren Fall zu einer Reduktion des Übergangsmetall-Spinmoments gegenüber dem MnPt_3 [117].

Wie ein Vergleich von Abb. 7.8 mit Abb. 7.1 deutlich macht, finden wir in unseren Mes-

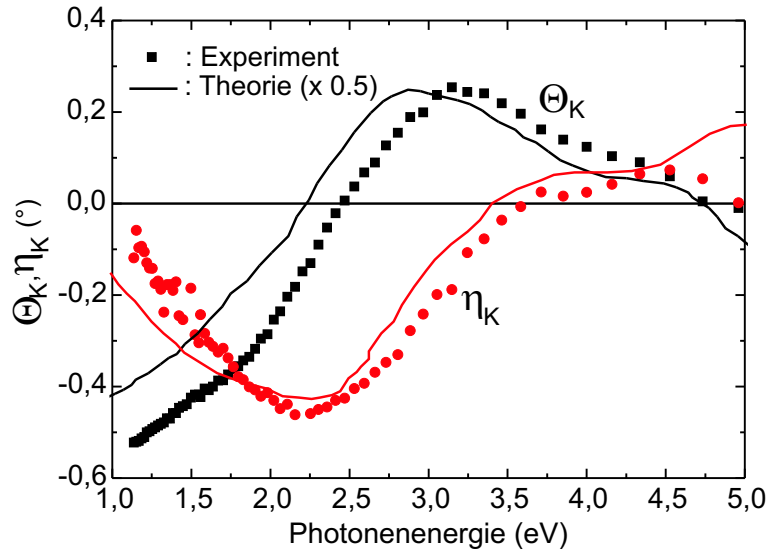


Abb. 7.8: Magnetooptische Kerr-Rotation einer 50 nm dicken CrPt₃-Probe. Zum Vergleich ist ein aus Bandstrukturechnungen abgeleitetes Spektrum [111] gezeigt.

sungen für MnPt₃ und CrPt₃ annähernd gleiche Absolutwerte in der extremalen Kerr-Drehung. Allerdings weicht bei der MnPt₃-Probe die Stöchiometrie im Gegensatz zur CrPt₃ deutlich von $x = 0,25$ ab, was, wie bereits geschildert, zu einer Abnahme der Magnetisierung und damit auch der Kerr-Drehung führt.

Abb. 7.9 zeigt Kerr-Spektren zweier CrPt₃-Schichten mit unterschiedlicher Dicke ($d_{CPST34} = 50$ nm, $d_{CPST28} = 10$ nm)³. Außer Abweichungen in den Absolutwerten, die möglicherweise auf eine leicht unterschiedliche Stöchiometrie der beiden Proben zurückführbar sind, sieht man für eine dünne Schicht deutlich eine Veränderung auch der Form des Spektrums. Diese Beobachtung diente als Motivation dafür, den Kerr-Effekt dieser intermetallischen Verbindungen in Abhängigkeit von der Schichtdicke zu untersuchen.

7.2.1 Einfluß der Schichtdicke auf den dielektrischen Tensor

Für eine systematische Studie der Dickenabhängigkeit sollte möglichst gewährleistet sein, daß sich die Proben unterschiedlicher Dicke miteinander vergleichen lassen. Das heißt, die übrigen Wachstumsparameter (wie z. B. Chromkonzentration, Substrattemperatur, Aufdampftrate u. a.) sollten nach Möglichkeit für alle Proben gleich sein. Zu diesem Zweck wurden in der Metall-MBE des Instituts keilförmige Proben gewachsen (siehe Abb. 7.10), bei denen die Dicke des CrPt₃-Films lateral über die Länge des Substrats von 2 cm z. B. zwischen 0 und 100 nm variiert.

³ Die Bezeichnung der Probe ergibt sich folgendermaßen: Die ersten beiden Buchstaben geben das aufgewachsene Material (hier: Chrom und Platin) an. Die anderen beiden Buchstaben benennen das Substrat (hier: SrTiO₃). Die Proben erhalten chronologisch fortlaufend Nummern, beginnend bei 01.

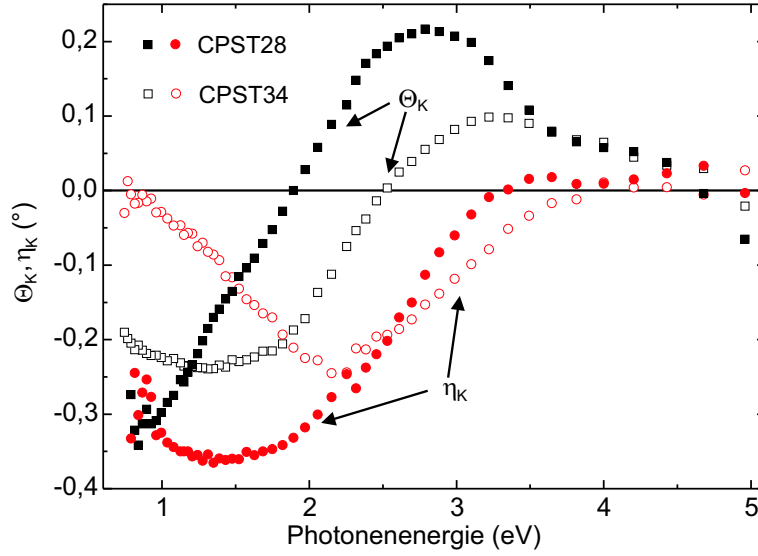


Abb. 7.9: Kerr-Spektren zweier CrPt_3 -Proben: CPST34 ($d = 50$ nm) und CPST28 ($d = 10$ nm).

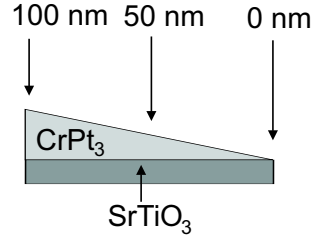


Abb. 7.10: Schematische Darstellung der untersuchten Keilprobe.

Wenn nun die Position der Probe mittels des Linearverstellers (siehe Kap. 3.2) im Strahlengang variiert wird, kann die Kerr-Rotation am gleichen Keil bei unterschiedlichen Dicken bestimmt werden. Wir haben Θ_K sowohl an einem Keil mit $0 \text{ nm} < d < 100 \text{ nm}$ als auch mit $0 \text{ nm} < d < 5 \text{ nm}$ in Schrittweiten von 10 bzw. 0,5 nm bestimmt. An der dünnen Keilprobe konnten nur stark verrauschte Kerr-Spektren aufgenommen werden, wobei die maximalen Dreh- und Elliptizitätswinkel jeweils nur wenige Hundertstel Grad betrugen. Abb. 7.11 zeigt die Resultate für den dickeren Keil.

Betrachtet man zunächst die Kurvenform, dann fällt auf, daß im Gegensatz zu den oben betrachteten Filmen CPST28 und CPST34 alle Rotationsspektren nahezu dasselbe Aussehen besitzen. Dieses läßt folgenden Schluß zu: Die Veränderung der Kurvenform, die in Abb. 7.9 zu sehen ist, kann für die dünnere Schicht durch einen Interferenzeffekt erklärt werden. Der direkt an der CrPt_3 -Oberfläche reflektierte Teilstrahl interferiert je nach Spektralbereich und Schichtdicke entweder konstruktiv oder destruktiv mit dem Teilstrahl, der zunächst durch den Film hindurchgeht und dann am SrTiO_3 -Substrat reflektiert wird. Dies kann, wie bereits in Kap. 2.2 angemerkt, zu einer erheblichen Veränderung

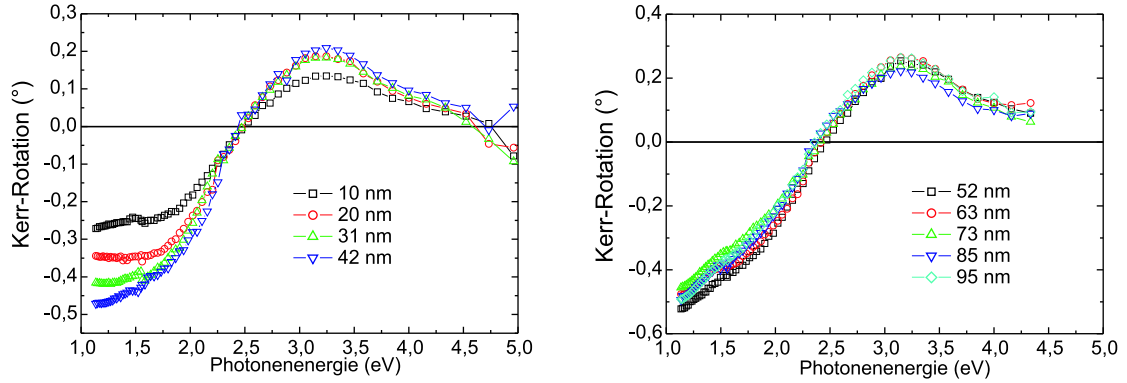


Abb. 7.11: Kerr-Rotations-Spektren an der CrPt₃-Keilprobe an Orten verschiedener Dicke.

des Spektrums führen. Bei dem dickeren Film mit $d = 50$ nm gelangt aufgrund der hohen Absorption des Metallfilms so wenig Lichtintensität zum Substrat, so daß der Anteil des zweiten Teilstrahls hier vernachlässigbar ist und somit keine Änderung des Spektrums durch Interferenzeffekte auftritt. Dieses wird zusätzlich gestützt durch die Tatsache, daß der spektrale Verlauf von Θ_K an allen Stellen des Keils sehr gut mit demjenigen der Probe CPST34 übereinstimmt: So tritt das UV-Maximum von Θ_K bei ca. 3,2 eV auf und der Nulldurchgang bei etwa 2,4 eV. Bei der Probe CPST28 ($d = 10$ nm) dagegen sind diese Strukturen deutlich (um ca. 0,5 eV) zu niedrigeren Energien hin verschoben. Die Frage, warum auch bei den geringeren Dicken der keilförmigen Schicht im Gegensatz zur Probe CPST34 keine signifikante Änderung der Linienform des Spektrums stattfindet, kann recht einfach beantwortet werden. Im Gegensatz zu der letztgenannten Probe sind die keilförmigen Filme natürlich nicht planparallel⁴. Somit wird bei der endlichen Breite (ca. 1 mm) des Lichtflecks auch nicht eine bestimmte Filmdicke, sondern ein kontinuierlicher Dickenbereich abgedeckt. Aus diesem Grund ist das Auftreten von Interferenzen bei der keilförmigen Probe nicht zu erwarten.

Um diese Vermutung zu untermauern, wurde die Kerr-Drehung und -Elliptizität von der dünneren Probe (CPST28) mit Hilfe des kohärenten Vielschichtmodells von Nies und Keßler [118] simuliert. Man geht dabei davon aus, daß die einfallende (\tilde{E}^e), reflektierte (\tilde{E}^r) und transmittierte (\tilde{E}^t) elektrische Feldstärke über eine Transfermatrix \tilde{M}^\pm miteinander zusammenhängen (vgl. auch Abb. 7.12):

$$\begin{pmatrix} \tilde{E}^{e,\pm} \\ \tilde{E}^{r,\pm} \end{pmatrix} = \tilde{M}^\pm \cdot \begin{pmatrix} \tilde{E}^{t,\pm} \\ 0 \end{pmatrix}. \quad (7.2)$$

Der Index \pm deutet hier auf das unterschiedliche Verhalten für links- und rechtszirkular

⁴ Die Keilform wie in Abb. 7.10 stellt natürlich eine idealisierte Annahme dar. Es ist jedoch so, daß im Gegensatz zu den (nominell) planparallelen Proben die Dickenunterschiede über die Fläche des Lichtflecks gesehen nicht statistisch verteilt sind.

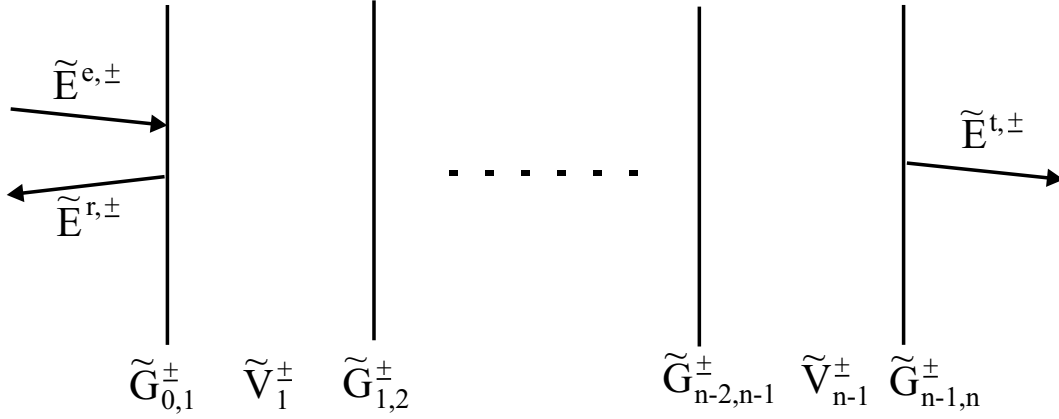


Abb. 7.12: Zur Definition der Größen im magnetooptischen Vielschichtmodell nach [118].

polarisiertes Licht hin. Bei einem halbumendlichen Material ist \tilde{M}^{\pm} gegeben durch die Fresnelschen Reflexionskoeffizienten $\tilde{\rho}^+$ bzw. $\tilde{\rho}^-$. Bei einem Mehrschichtsystem mit insgesamt N Schichten dagegen ist die Transfermatrix zusammenzusetzen aus Grenzflächen- und Volumenmatrizen der Einzelschichten j :

$$\tilde{M}^{\pm} = \begin{pmatrix} \tilde{m}_{11}^{\pm} & \tilde{m}_{12}^{\pm} \\ \tilde{m}_{21}^{\pm} & \tilde{m}_{22}^{\pm} \end{pmatrix} = \prod_{j=1}^N \tilde{G}_{j-1,j}^{\pm} \cdot \tilde{V}_j^{\pm} \cdot \tilde{G}_{j,j+1}^{\pm}, \quad (7.3)$$

wobei $\tilde{G}_{j,j+1}^{\pm}$ die Reflexion des Lichtes an der Grenzfläche zwischen zwei Schichten beschreibt:

$$\tilde{G}_{j,j+1}^{\pm} = \frac{1}{\tilde{t}_{j,j+1}^{\pm}} \begin{pmatrix} 1 & \tilde{\rho}_{j,j+1}^{\pm} \\ \tilde{\rho}_{j,j+1}^{\pm} & 1 \end{pmatrix}. \quad (7.4)$$

Die Volumenmatrix

$$\tilde{V}_j^{\pm} = \begin{pmatrix} e^{+i\tilde{\phi}_j^{\pm}} & 0 \\ 0 & e^{-i\tilde{\phi}_j^{\pm}} \end{pmatrix} \quad (7.5)$$

beschreibt den Durchgang der elektromagnetischen Welle durch die Schicht i mit der Dicke d und dem komplexen Brechungsindex \tilde{n}_j^{\pm} über den Phasenfaktor

$$\tilde{\phi}_j^{\pm} = \frac{\omega}{c} \tilde{n}_j^{\pm} \cdot d. \quad (7.6)$$

Man braucht für die Berechnung der magnetooptischen Eigenschaften des Mehrschichtsystems also die Diagonal- und die Nichtdiagonalelemente aller Einzelschichten. Die diagonalen und nichtdiagonalen optischen Leitfähigkeiten lassen sich nach Gl. 2.45 in diejenigen für links- und rechtszirkular polarisiertes Licht umrechnen und umgekehrt. Der Fresnelsche Transmissionskoeffizient $\tilde{t}_{j,j+1}^{\pm}$ ist gegeben durch

$$\tilde{t}_{j,j+1}^{\pm} = \frac{2}{\tilde{n}_j^{\pm} + \tilde{n}_{j+1}^{\pm}}, \quad (7.7)$$

während $\rho_{j,j+1}^{\pm}$ gemäß Gl. 2.30 mit den Brechungsindizes \tilde{n}_+ und \tilde{n}_- zusammenhängt. Die magnetooptische Kerr-Rotation des Schichtsystems kann nunmehr aus den Koeffizienten \tilde{m}_{11}^{\pm} und \tilde{m}_{21}^{\pm} der Transfermatrix berechnet werden:

$$\Theta_K + i\eta_K = \frac{1}{2i} \cdot \ln \left(\frac{\tilde{m}_{11}^+ \cdot \tilde{m}_{21}^-}{\tilde{m}_{11}^- \cdot \tilde{m}_{21}^+} \right). \quad (7.8)$$

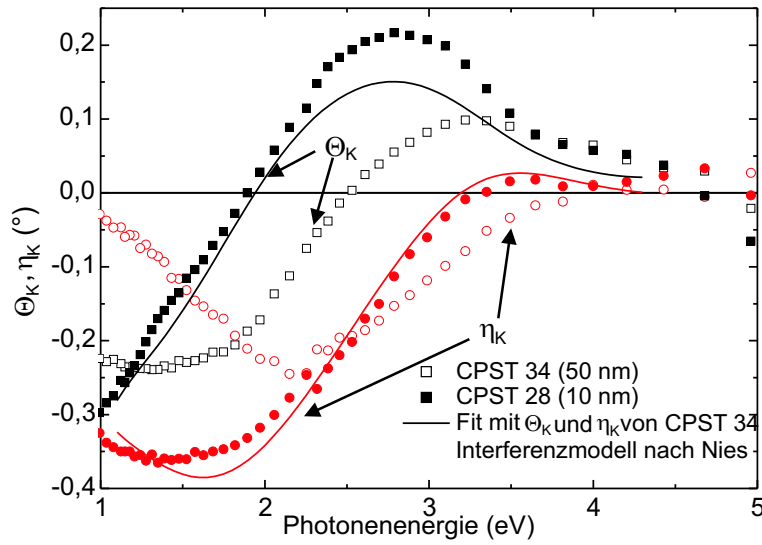


Abb. 7.13: Vergleich der beiden in Abb. 7.9 dargestellten Kerrspektren mit einem nach dem Vielschichtmodell berechneten Spektrum. Im Fit wurde eine Schichtdicke von 10 nm angenommen.

Abb. 7.13 zeigt nun das nach dem oben dargestellten Vielschichtmodell berechnete Spektrum im Vergleich mit den gemessenen Spektren an den beiden Proben CPST34 und CPST28. Für den Fit wurde eine Filmdicke von 10 nm angenommen. Für die Diagonalelemente wurden *bulk*-ähnliche Werte für n und k von CrPt₃ verwendet. n und k des SrTiO₃-Substrats wurde ellipsometrisch an einer anderen, ebenfalls polierten SrTiO₃-Probe gemessen. Das Nichtdiagonalelement von CrPt₃ wurde mit den Diagonalelementen sowie der Kerr-Drehung und -Elliptizität der dickeren Probe CPST34 berechnet⁵.

Die spektralen Positionen des Maximums und des Nulldurchgangs der berechneten Kerr-Rotation stimmen jetzt sehr gut mit den am dünnen Film gemessenen überein. Ebenso erscheint die deutliche Änderung des Elliptizitätsspektrums mit dem Auftreten eines breiten Minimums bei ca. 1,5 eV auch in der Anpassung. Differenzen gibt es dagegen in den Absolutwerten insbesondere bei der Rotation im sichtbaren Spektralbereich. Hier liegen die gemessenen Werte um bis zu 50 % über denjenigen, die man mit dem Vielschichtmodell bekommt. Eine Hauptfehlerquelle bei der Anpassung kann sicherlich in der Annahme der

⁵ Das Nichtdiagonalelement von SrTiO₃ wurde vernachlässigt.

optischen Konstanten von CrPt_3 bestehen. Diese sind tatsächlich sehr empfindlich von der Probenbeschaffenheit abhängig, worauf in diesem Kapitel später noch eingegangen wird. Somit kann die in Abb. 7.13 gezeigte Anpassung nur einen Näherungswert darstellen. Die spektralen Verläufe des Kerr-Effekts dieses Mehrschichtsystems können damit aber nicht-destotrotz in einer ausgezeichneten Weise wiedergegeben werden.

In [121] wurde die Abhängigkeit der Kerr-Drehung von der Filmdicke an Co/Pt-Supergittern bei einer vorgegebenen Wellenlänge untersucht. Dort steigt die Kerr-Drehung gegenüber dem „Bulkwert“ mit abnehmender Dicke zunächst an, um erst für sehr geringes d stark gegen 0 abzufallen. Ein ähnliches Verhalten findet man in Falle des CrPt_3 ebenfalls, wenn man den Vielschichtformalismus anwendet. Die Ergebnisse der Rechnung sind in Abb. 7.14 für zwei verschiedene Photonenenergien dargestellt. Eine Übereinstimmung der Absolutwerte, die sich aus dem Modell ergeben, mit denjenigen aus den Messungen ist zwar nur ansatzweise gegeben. Allerdings wird aus den Messwerten dennoch erkennbar, daß die generellen Trends (Überhöhung der Kerr-Elliptizität bei 1,2 eV sowie größere Kerr-Drehung bei 3,2 eV für geringe Schichtdicken) durch das Modell gut wiedergegeben werden. Es muß dazu angemerkt werden, daß die Herstellungsparameter der einzelnen Proben leicht variieren können und daher insbesondere die intrinsischen Θ_K - und η_K -Verläufe nicht notwendigerweise für jede Probe gleich sind.

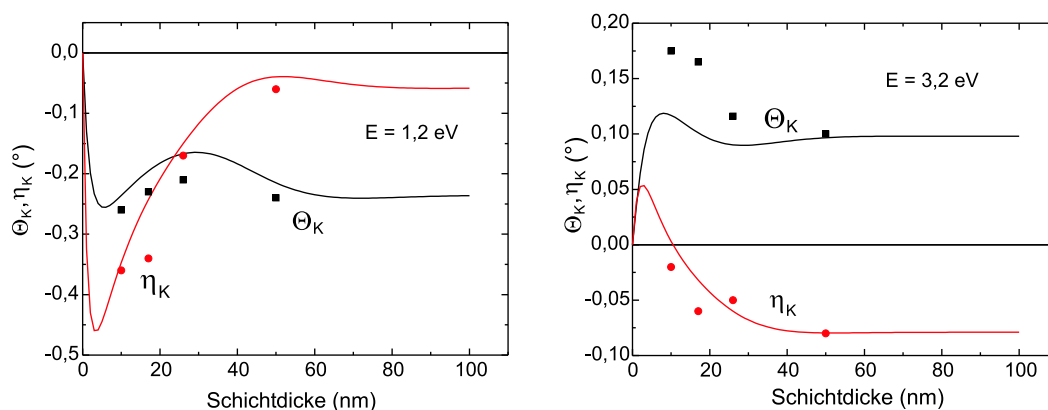


Abb. 7.14: Abhängigkeit des Kerr-Effekts von der Schichtdicke im Fall kohärenter Überlagerung der vielfachreflektierten Strahlen. Die Linien zeigen die nach [118] berechnete Kerr-Drehung und -Elliptizität für zwei unterschiedliche Photonenenergien. Die an Filmen unterschiedlicher Dicke gemessenen Werte sind als Quadrate (Θ_K) bzw. Kreise (η_K) dargestellt.

Wie bereits oben angemerkt, gibt es bei den Messungen an der keilförmigen Probe keine nennenswerte Änderung der Struktur mit der Schichtdicke. Abb. 7.15 zeigt die absolute Kerr-Drehung im Maximum bei ca. 3,2 eV als Funktion der durchschnittlichen Filmdicke.

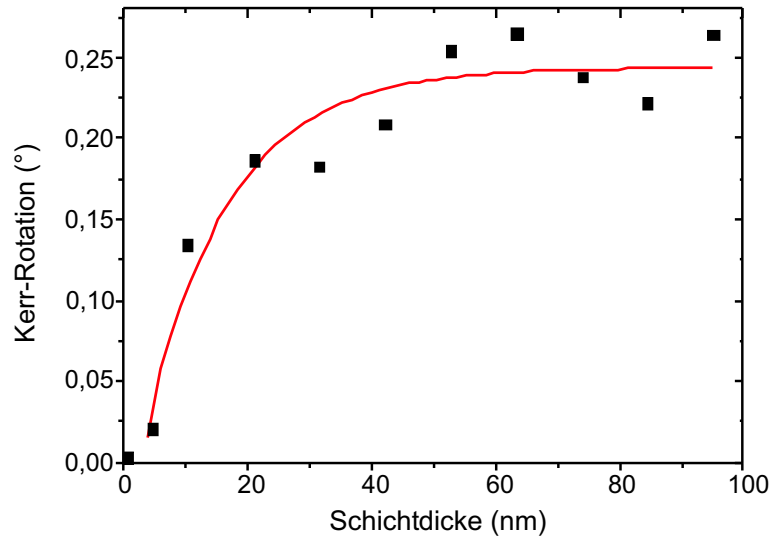


Abb. 7.15: Dickenabhängigkeit der Kerr-Rotation an der Keilprobe im Maximum bei 3,2 eV. Die Linie dient zur Führung des Auges.

Θ_K ist für Filme mit $d > 40$ nm nahezu konstant, während die Werte für niedrige Dicken stark absinken. Dieses kann einfach dadurch erklärt werden, daß man bei sehr dünnen Filmen noch Anteile des nichtmagnetischen Substrats „sieht“. Letzterer führt zu einer Reduktion des Kerr-Signals. Vergleichbare Ergebnisse wurden auch an dünnen Seltenerd-Übergangsmetall-Legierungen gefunden [119]. Eine Überhöhung der Kerr-Rotation bei geringen Schichtdicken konnte bei der Keilprobe nicht nachgewiesen werden.

Für den Fall kontinuierlich variierender Schichtdicke kann eine Berechnung des resultierenden Spektrums mit einem Modell kohärenter Überlagerung der mehrfach reflektierten Lichtanteile nicht mehr angewendet werden. Vielmehr wäre die Verwendung eines inkohärenten Vielschichtformalismus notwendig. Die hierbei auftretenden Probleme wurden von Keßler [120] ausführlich diskutiert. Zum einen hängen die Meßergebnisse im Falle inkohärenter Überlagerung von der verwendeten Meßmethode ab, so daß sich unterschiedliche Werte für die Kerr-Elliptizität ergeben können, je nachdem, ob man eine links-rechts-zirkulare Polarisationsmodulation wie in Kap. 3.1.1 beschrieben verwendet oder die Elliptizität durch eine Analysatordrehung (Senarmont-Prinzip, Kap. 3.2 bzw. Anhang B) ermittelt. Dies ergibt sich daraus, daß im erstgenannten Fall links- und rechtszirkular polarisiertes Licht abwechselnd, im letztgenannten beide Moden dagegen simultan auf die Probe treffen. Die Kerr-Drehung, die im Folgenden nur betrachtet werden soll, ist dagegen unabhängig von der Meßmethode.

Eine Bestimmung der magnetooptischen Kerr-Drehung bzw. -Elliptizität ist, anders als im kohärenten Fall, hier nicht möglich, anstatt dessen existieren nur Näherungsrechnungen. Der Unterschied liegt darin, daß im kohärenten Fall sich die *elektrischen Feldstärken* der Einzelwellen addieren. Im inkohärenten Fall sind stattdessen die *Strahlungsflußdichten* zu

betrachten [120].

Als Ergebnis kann festgehalten werden, daß die im kohärenten Fall auftretenden Interferenzstrukturen in den Kerr-Spektren hier nicht vorhanden sind. Somit ist die Tatsache, daß der Einfluß der Schichtdicke bei der keilförmigen Probe sich nur in einer Stauchung, aber nicht im Entstehen neuer Strukturen (siehe Abb. 7.11) bemerkbar macht, mit Hilfe eines Modells inkohärenter Überlagerung gut erklärbar.

Die Diskussion der optischen Eigenschaften von Filmen unterschiedlicher Schichtdicke führt dagegen in eine andere Richtung. In Abb. 7.16 ist die dielektrische Funktion für CrPt_3 -Filme unterschiedlicher Schichtdicke dargestellt.

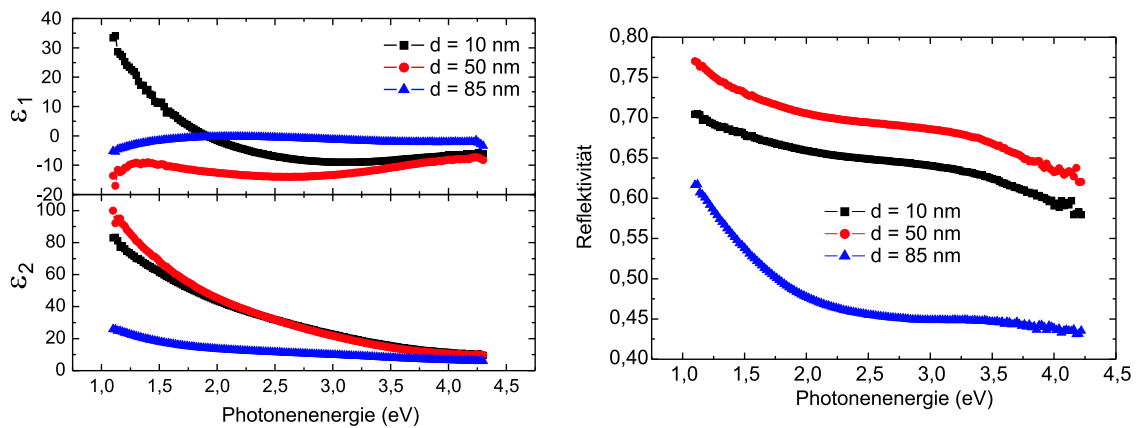


Abb. 7.16: Ellipsometrisch gemessener Real- und Imaginärteil der DK an CrPt_3 -Filmen unterschiedlicher Dicke. Rechts: Aus ε_1 und ε_2 errechnete Reflektivität bei senkrechter Inzidenz.

Für den Film mit 50 nm Schichtdicke sind die optischen Konstanten etwa vergleichbar denjenigen, die auch an CrPt_3 -Einkristallen gemessen worden sind [105]. Der dünnste Film ($d = 10$ nm) zeigt dagegen ein leichtes Abfallen von ε_2 bei einem gleichzeitigen deutlichen Anstieg von ε_1 im Bereich unterhalb $E = 2,2$ eV. Dieses bedeutet, daß der Brechungsindex n gegenüber dem Bulkwert erhöht, der Extinktionskoeffizient k dagegen verringert ist. Dagegen findet man bei großen Schichtdicken ($d \approx 85$ nm) sowohl für ε_1 , ε_2 , als auch R gegenüber dem Volumenmaterial deutlich verminderte Werte. Um diese Unterschiede zu verstehen, sollte ein Blick auf die Morphologie der Filme in den unterschiedlichen Stadien des Wachstums geworfen werden.

Abb. 7.17 zeigt Rasterkraftmikroskop-Aufnahmen von CrPt_3 -Filmen bei $d = 2,5$ nm bzw. $d = 80$ nm. Das Bild für den dünneren Film zeigt deutlich das Auftreten kleiner Inseln mit einem Durchmesser ϕ von ca. 10 - 20 nm.

Diese Beobachtung deutet darauf hin, daß CrPt_3 auf SrTiO_3 zunächst in der Volmer-

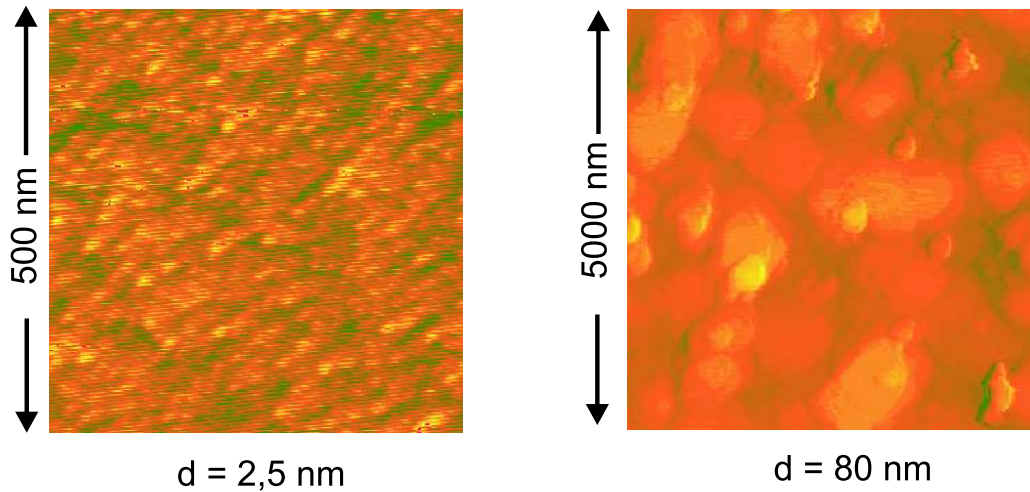


Abb. 7.17: Rasterkraftmikroskop-Aufnahmen von CrPt₃-Schichten unterschiedlicher Dicke.

Weber-Mode, d. h. dreidimensional wächst. Bei einer kritischen Schichtdicke ($d_{krit} \approx 30$ nm [64]) wachsen die CrPt₃-Inseln zu einem glatten Film zusammen, wie mit RHEED bereits gezeigt wurde [123]. Dies kann auch eine Erklärung dafür sein, daß bei dem 50 nm dicken Film *bulk*-artige optische Konstanten gefunden werden.

Das inselartige Wachstum in Verbindung mit der geringen Schichtdicke liefert nun einen Ansatzpunkt zur Interpretation des optischen Spektrums der 10 nm dünnen CrPt₃-Schicht. Da die Eindringtiefe des Lichts in CrPt₃ zwischen 7 und 12 nm liegt, ist bei dieser geringen Schichtdicke ein Mehrschichtmodell anzuwenden, um den Einfluß des Substrats zu berücksichtigen. Das Ergebnis der Simulation der dielektrischen Funktion für ein Zweischichtsystem⁶, bestehend aus dem SrTiO₃-Substrat und einem 10 nm dicken Film ist in Abb. 7.18 a gezeigt.

Es ist gut zu erkennen, daß das einfache Vielschichtmodell mit der Schichtdicke als einzigem Fitparameter den veränderten Verlauf des ε_1 gegenüber dem *bulk*-artigen Kurvenverlauf im niedrigen Energiebereich vernünftig wiedergibt. Die Schichtdicke d_{Fit} ist in dem Modell mit 20 nm angenommen worden. Die große Abweichung zur nominellen Dicke kann wiederum mit der Keilförmigkeit der Probe erklärt werden. Da bei der Ellipsometrie mit einem großen Einfallswinkel von ca. 70° gearbeitet wird, ist der Lichtfleck auf der Probe mit etwa 5 mm verhältnismäßig breit. Daher ist eine genaue Angabe der Schichtdicke für die optischen Messungen nicht möglich.

Quantitativ gibt es dagegen deutliche Abweichungen zwischen der Messung und dem aus

⁶ Die Rechnung erfolgte mit dem Programm *AnalysR 4.0*, der dort verwendete Algorithmus ist in [30], S. 356 zu finden.

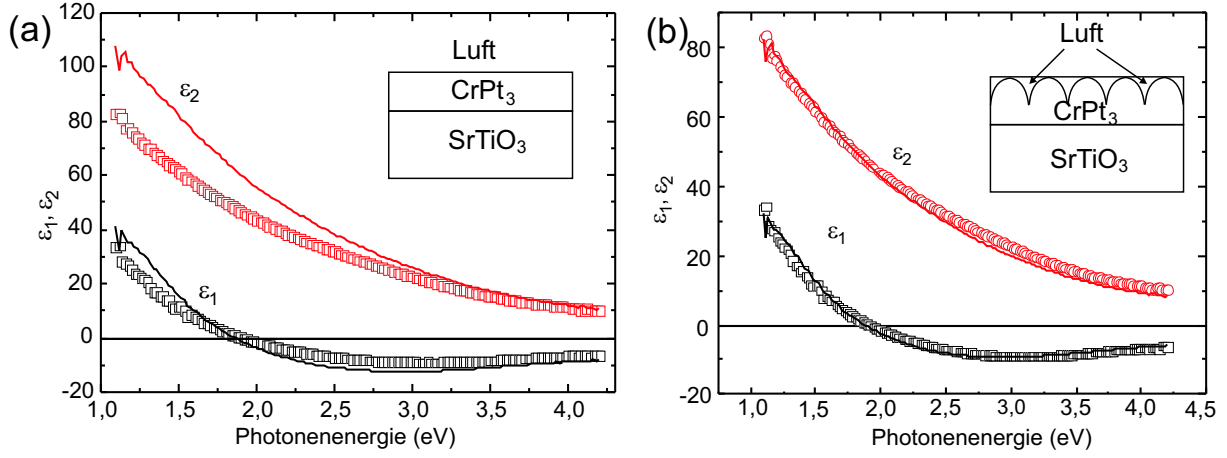


Abb. 7.18: Pseudodielektrische Funktion eines dünnen CrPt_3 -Films ($d \approx 10$ nm) verglichen mit einem Vielschichtmodell unter Verwendung der *bulk*-artigen optischen Konstanten von CrPt_3 (a) bzw. eines effektiven Mediums bestehend aus CrPt_3 und Luft (b).

dem Zweischichtmodell gefitteten $\tilde{\epsilon}$. Es ist zu vermuten, daß hier die inselförmige Struktur des Filmes eine Rolle spielt. Zur Berücksichtigung von Inhomogenitäten eines Materials bzw. zur Beschreibung der optischen Eigenschaften von Mischmedien sind verschiedenartige Effektiv-Medium-Theorien vorgeschlagen worden (siehe dazu z. B. [124]). Geeignet für die Anpassung des Spektrums eines inselartigen Films erscheint das *Bruggeman-Modell* [125] zu sein. Es geht von einer Mischung von Partikeln der Materialien A und B aus, wobei die Konzentration von A und B in derselben Größenordnung liegen. Das Mischmedium besitzt dann eine effektive dielektrische Funktion $\tilde{\epsilon}_{eff}$, die mit den dielektrischen Funktionen der beiden Medien A und B folgendermaßen zusammenhängt:

$$q \cdot \frac{\tilde{\epsilon}_A - \tilde{\epsilon}_{eff}}{\tilde{\epsilon}_{eff} + L(\tilde{\epsilon}_A - \tilde{\epsilon}_{eff})} + (1 - q) \cdot \frac{\tilde{\epsilon}_B - \tilde{\epsilon}_{eff}}{\tilde{\epsilon}_{eff} + L(\tilde{\epsilon}_B - \tilde{\epsilon}_{eff})} = 0. \quad (7.9)$$

Der Füllfaktor q gibt den prozentualen Volumenanteil des Mediums A innerhalb des Materials an. Wenn man von sphärischen Teilchen ausgeht, nimmt der Depolarisationsfaktor L den Wert $1/3$ an. Die effektive dielektrische Funktion kann dann explizit ausgerechnet werden:

$$\tilde{\epsilon}_{eff} = 0,5 \cdot (-z + \sqrt{-z^2 + 2\tilde{\epsilon}_A\tilde{\epsilon}_B}), \quad (7.10)$$

mit

$$z = 0,5 \cdot ((3q - 2)\tilde{\epsilon}_B + (1 - 3q)\tilde{\epsilon}_A). \quad (7.11)$$

Abb. 7.18 b zeigt nun eine Anpassung, die das Zweischichtmodell dahingehend erweitert, daß der CrPt_3 -Film durch ein effektives Medium, bestehend aus CrPt_3 und Luft ($\tilde{\epsilon} = 1$), ersetzt wird. Auf diese Art und Weise kann der Volmer-Weber-Wachstumsmodus (angedeutet durch das Inset in Abb. 7.18 b) zumindest in erster Näherung berücksichtigt werden. Unter Annahme einer Filmdicke von $d_{Fit} = 22$ nm sowie eines Luft-Anteils q von 0,15 gelingt ein deutlich verbesserter Fit an die gemessenen optischen Daten. Die mit

dem Bruggeman-Modell berechnete effektive DK ist gegenüber derjenigen von *bulk*-CrPt₃ sowohl für Real- als auch Imaginärteil um einen Faktor von etwa 0,78 gestaucht. Veränderungen in den Strukturen treten dagegen nicht auf.

An dieser Stelle sei aber auch auf die Gefahren hingewiesen, die bei derartigen Interpretationen passieren können. Beispielsweise kann ein effektives Medium anstatt mit Bruggeman auch mit dem *Maxwell-Garnett-Modell* [126] beschrieben werden. Diese beiden Modelle unterscheiden sich in ihren Voraussetzungen: Während bei Bruggeman von einer vergleichbaren Konzentration der beiden Ausgangsmaterialien A und B ausgegangen wird, geht Maxwell-Garnett von einem sehr viel kleineren Anteil von A gegenüber B aus (jedes Teilchen von A „sieht“ in seiner Umgebung nur Teilchen von B). Die effektive DK ergibt sich dann zu:

$$\frac{\varepsilon_{eff} - 1}{\varepsilon_{eff} + 2} = q \cdot \frac{\varepsilon_A - 1}{\varepsilon_A + 2} + (1 - q) \cdot \frac{\varepsilon_B - 1}{\varepsilon_B + 2}. \quad (7.12)$$

Ein erster Fit an das in Abb. 7.18 dargestellte optische Spektrum wurde tatsächlich mit dem Maxwell-Garnett-Modell durchgeführt. Unter Annahme eines Füllfaktors von CrPt₃ von 0,985 *ohne* Berücksichtigung des Substrats gelang eine Anpassung, die in ihrer Qualität mit derjenigen in Abb. 7.18 b durchaus vergleichbar ist. Tatsächlich wurden in der Vergangenheit zahlreiche optische Experimente an dünnen Filmen durchgeführt, und die Ergebnisse konnten z. T. auch im Rahmen des Maxwell-Garnett-Modells befriedigend erklärt werden [127], so etwa das Ansteigen des Brechungsindex bei gleichzeitigem Absinken des Extinktionskoeffizienten mit abnehmender Schichtdicke.

Im vorliegenden Fall führt der Maxwell-Garnett-Ansatz dagegen zu physikalisch wenig sinnvollen Aussagen, denn ein Luftanteil in effektiven Medium von nur 1,5 % erscheint bei einem inselartigen Film unrealistisch. Ebenso verfälscht die Nichtberücksichtigung des Substrates das tatsächliche Ergebnis. Das Hauptproblem besteht aber darin, daß ein guter Fit nur erzielt wird, wenn Luft als Wirtsmaterial angenommen wird und CrPt₃ als „Einschluß“ mit einem q von 0,985. Dieses steht im krassen Widerspruch zur Voraussetzung der Gültigkeit der Maxwell-Garnett-Theorie. Eine Annahme von CrPt₃ als Wirtsmaterial mit Lufteinschlüssen führt andererseits zu einem deutlich veränderten, schlechteren Fit⁷.

Komplett anders liegen die Dinge im Fall einer verhältnismäßig dicken Schicht ($d \approx 85$ nm). Wie in Abb. 7.17 rechts zu sehen ist, besteht dieser Film aus unregelmäßig geformten Inseln, die einen deutlich größeren mittleren Durchmesser ($\varnothing \approx 500$ nm) besitzen, als diejenigen, die zu Beginn des Wachstums auftreten. Das läßt sich dahingehend interpretieren, daß der vormals glatte Film mit zunehmender Schichtdicke „aufreißt“. Da die durchschnittliche Inselgröße in dem Bereich optischer Wellenlängen liegt, treten erhebliche Streuverluste auf. Dies wird allein schon beim ersten optischen Eindruck des Films deutlich, der (im Gegensatz zu den dünneren Filmen) nicht metallisch glänzend, sondern etwas milchig erscheint. Daher liegt es nahe, daß diese Streuung zu der gemessenen drastischen Reduzierung von ε_1 , ε_2 sowie R verantwortlich ist. Eine Beschreibung des Spektrums mit Hilfe eines Effektiv-Medium-Ansatzes gelang nicht. Dies ist aufgrund der Tatsache, daß

⁷ Im Gegensatz zu Bruggeman sind in der Maxwell-Garnett-Theorie Wirts- und Gastmaterial nicht vertauschbar. Beispielsweise bekommt man unter Annahme von verschiedenen Volumenanteilen A und B unterschiedliche optische Spektren, je nachdem, ob man A oder B als Wirtsmaterial definiert.

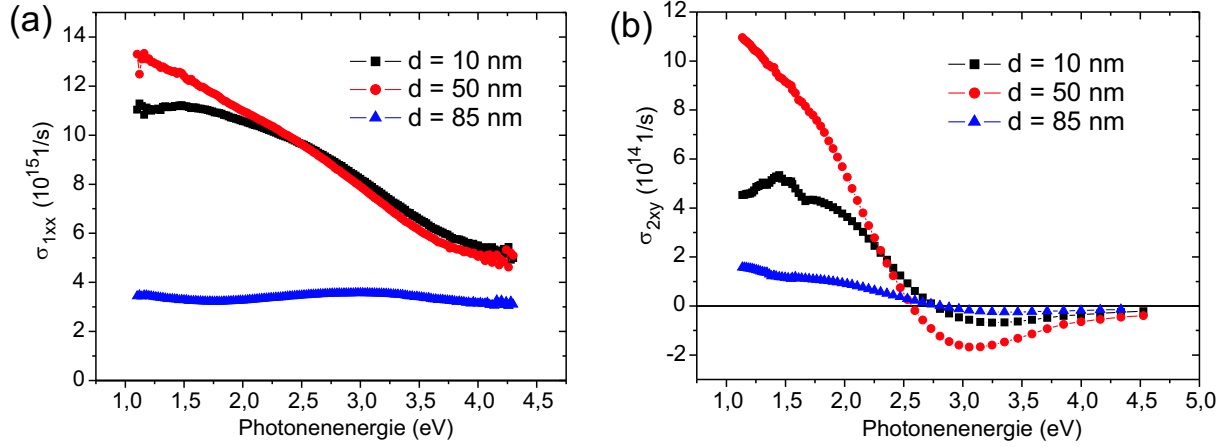


Abb. 7.19: Absorptiver Teil der (a): diagonalen und (b): nicht-diagonalen optischen Leitfähigkeit.

in diesen Modellen in der Regel $\phi_{\text{Partikel}} \ll \lambda$ vorausgesetzt wird [124], allerdings auch nicht verwunderlich. Abb. 7.19 zeigt Diagonal- und Nichtdiagonalelement der optischen Leitfähigkeit der unterschiedlich dicken CrPt_3 -Filme. Im Fall des Films mit $d = 85$ nm besitzt das magnetooptische Kerr-Spektrum, wie bereits oben angemerkt, nahezu dieselbe Form wie für das Volumenmaterial. Somit verringert sich das Nichtdiagonalelement nach

$$\Theta_K - i\eta_K = \frac{\tilde{\sigma}_{xy}}{\tilde{\sigma}_{xx}\tilde{n}} \quad (7.13)$$

aufgrund der Reduktion der optischen Konstanten. Sowohl Real- als auch Imaginärteil von $\tilde{\sigma}_{xy}$ weisen Strukturen auf, die denjenigen im MnPt_3 sehr ähnlich sind. Somit können die in Kap. 7.1.1 angestellten Überlegungen für die Interpretation der Interbandübergänge auf den Fall des CrPt_3 weitestgehend übertragen werden. Nach Iwashita et al. [117] besitzt CrPt_3 verglichen mit MnPt_3 eine deutlich höhere Zustandsdichte am Fermi-niveau, wodurch die höheren Absolutwerte sowohl im $\tilde{\sigma}_{xx}$ als auch im $\tilde{\sigma}_{xy}$ zu erklären sind.

7.2.2 Chemische Ordnung

Weiterhin wurde untersucht, inwieweit der Grad der chemischen Ordnung die Kerr-Drehung beeinflusst. Zu diesem Zweck wurden zwei CrPt_3 -Proben auf (001)-orientierten SrTiO_3 -Substraten hergestellt, bei denen die Substrattemperatur unterschiedlich gewählt wurde, während die übrigen Herstellungsparameter (Stöchiometrie, Schichtdicke) konstant gehalten wurden. Bei $T_{\text{Substrat}} = 1000^\circ\text{C}$ entsteht ein Film mit einer Überstruktur, wie die RHEED-Aufnahme (Abb. 7.20 rechts) zeigt. Dieses ist ein Hinweis auf das Auftreten der L_{12} -Struktur.

Wählt man die Substrattemperatur dagegen zu $T_{\text{Substrat}} = 600^\circ\text{C}$, bewirkt dies eine verringerte Diffusion der auf das Substrat auftreffenden Chrom- bzw. Platinatome. Aus diesem Grund kann sich die L_{12} -Struktur nicht bzw. nicht vollständig ausbilden. Die Überstruk-

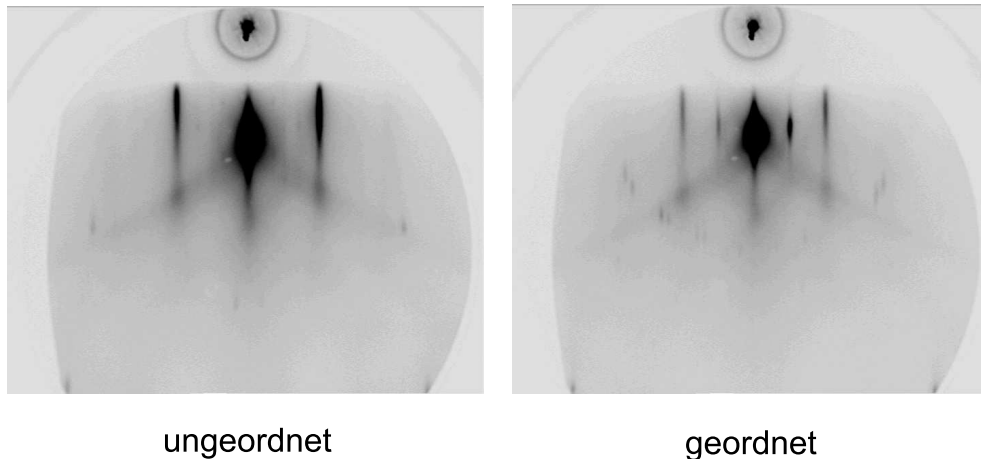


Abb. 7.20: RHEED-Pattern für eine CrPt₃-Probe mit einem hohen Grad chemischer Ordnung (rechts). Die Überstruktureffekte (vgl. Abb. 4.5) sind deutlich zu sehen. Links: RHEED-Aufnahme eines weitgehend ungeordneten CrPt₃-Films. Durch die fehlende Ordnung verändert sich die Periodizität des Kristallgitters und die Überstruktur verschwindet weitgehend.

turreffekte im RHEED verschwinden dann⁸ (Abb. 7.20 links), weil die verschiedenen Atomsorten statistisch verteilt sind und damit die bei der L1₂-Struktur zusätzlich auftretende Periodizität des Kristallgitters nicht mehr vorhanden ist.

Abb. 7.21 zeigt die magnetooptische Kerr-Drehung der beiden bei unterschiedlichen Substrattemperaturen gewachsenen CrPt₃-Filme. Man sieht bei der „un“geordneten Probe deutlich eine gegenüber der geordneten Probe verminderte Kerr-Drehung. Eine Veränderung der Struktur der Spektren tritt dagegen nicht auf. In Abb. 7.21 ist zusätzlich noch das um einen Faktor 0,55 gestauchte Spektrum der chemisch geordneten Probe dargestellt. Dieses stimmt nach Struktur und Absolutwerten nahezu exakt mit demjenigen der ungeordneten Probe überein. Zum Vergleich sind in Abb. 7.21 noch SQUID-Hysteresekurven der beiden Probe dargestellt, die die *out of plane*-Magnetisierung bei $T = 10$ K zeigen. Die Sättigungsmagnetisierung M_S bei der ungeordneten Probe beträgt dagegen nur etwa 43 % des Wertes für die geordnete Probe. Da die Curie-Temperaturen für beide Proben dieselben sind, ist es zu erwarten, daß dies auch für das Verhältnis $M_S(300\text{ K})/M_S(10\text{ K})$ gilt und damit der Faktor 0,43 in der Magnetisierung auch für Raumtemperatur gültig

⁸ Der Ordnungsparameter ist proportional zur Wurzel des Intensitätsverhältnisses Überstruktur- / Hauptreflex [64], d. h. eine Verminderung des Ordnungsparameters um den Faktor 3 führt zu einer Reduktion der Überstruktureffekt-Intensität um 9.

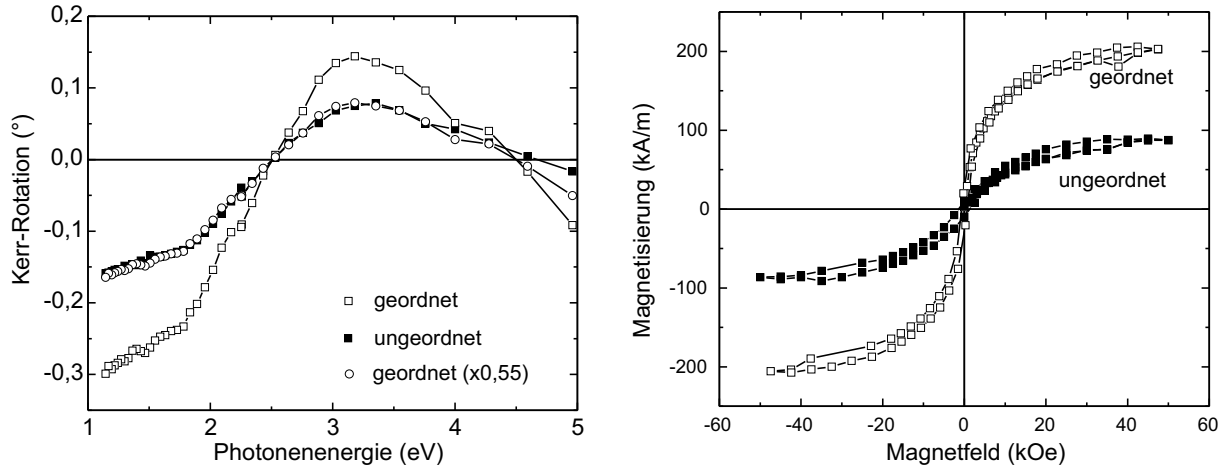


Abb. 7.21: Links: Magnetooptische Kerr-Rotation an einem chemisch geordneten (offene Quadrate) und einem weitgehend ungeordneten Film (geschlossene Quadrate.) Zum Vergleich ist die Messung am geordneten CrPt_3 um einen Faktor 0,55 gestaucht dargestellt (offene Kreise). Rechts: *Out of plane*-Magnetisierungsmessungen bei $T = 10$ K.

ist.

Dieser Unterschied zwischen den Ergebnissen aus den Kerr- bzw. den Magnetisierungsmessungen mag in der Kinetik des Ordnungsprozesses zu suchen sein. Die Oberflächendiffusion übersteigt die Volumendiffusion um einige Größenordnungen. Der Volumen-Ordnungsparameter S_V , der aus Röntgenbeugungsmessungen ermittelt wurde [122], ist daher bei kleinen Substrattemperaturen ($T_{\text{Substrat}} < 900\text{K}$) wesentlich geringer als der aus RHEED bestimmte Oberflächenordnungsparameter S_O [64]. Weil die (magneto-)optischen Messungen stärker oberflächensensitiv sind als die Magnetisierungsbestimmung mit einem SQUID, würde man daher auch erwarten, daß das Verhältnis $\Theta_{K,\text{ungeordnet}}/\Theta_{K,\text{geordnet}}$ größer ist als dasjenige der Sättigungsmagnetisierungen. Somit werden durch die hier vorgestellten Messungen die oben beschriebenen Unterschiede zwischen Oberflächen- und Volumenordnung indirekt bestätigt.

Überraschend mag auf den ersten Blick die Tatsache wirken, daß auch im Fall des ungeordneten CrPt_3 eine (ferro-)magnetische Ordnung bzw. eine meßbare Kerr-Rotation auftritt. Dies kann zum einen auf die Tatsache zurückzuführen sein, daß auch bei einer Substrattemperatur von 600°C keine komplette Unterdrückung der chemischen Ordnung auftritt. Der Grad der chemischen Ordnung wird durch den *Ordnungsparameter* S ausgedrückt, der angibt, wie hoch die Wahrscheinlichkeit p ist, ein beliebiges Atom auf dem „richtigen“ Gitterplatz zu finden [64]:

$$S = \frac{p - p_d}{p_o - p_d} \quad (7.14)$$

p_o, p_d gibt die Wahrscheinlichkeit für ein vollständig geordnetes bzw. vollständig ungeordnetes Kristallgitter an, d. h. im erstgenannten Fall wird $S = 1$, im zweiten $S = 0$. Der

Ordnungsparameter bei dieser Temperatur läßt sich aus RHEED-Messungen zu etwa 0,3 bestimmen [64]. Ein Beitrag des ungeordneten CrPt_3 zum Kerr-Effekt bzw. zur Magnetisierung läßt sich dagegen nicht nachweisen, obwohl ungeordnetes CrPt_3 eine geänderte Bandstruktur besitzt. Dies liegt sowohl an einer Faltung der Bänder durch die Überstruktur im geordneten Fall, zum anderen durch die Möglichkeit von Cr-Cr-Nachbarschaft im ungeordneten CrPt_3 [123].

8. Zusammenfassung

Ein wesentlicher Teil dieser Arbeit lag in der Untersuchung der Variation der Lokalisierung der f -Elektronen im System $U_xLa_{1-x}S$ in Abhängigkeit von der Urankonzentration. Untersucht wurden die Proben mit dem magnetooptischen Kerr-Effekt sowie optischer Spektroskopie. Da dieses Materialsystem erst deutlich unterhalb Raumtemperatur Ferromagnetismus zeigt, wurde zu diesem Zweck ein Tieftemperatur-Kerrspektrometer in der Hochmagnetfeldanlage aufgebaut. Dieses ermöglicht einen weitgehend automatisierten Ablauf von Messungen der magnetooptischen Kerr-Rotation und -Elliptizität bei Temperaturen von ca. 10 K sowie die Aufnahme magnetooptischer Hystereseschleifen.

Im $U_xLa_{1-x}S$ wird der Grad der f -Elektronen-Lokalisierung folgendermaßen verändert: Die magnetische Verdünnung mit Lanthan bewirkt eine Verringerung der Zahl nächster Uran-Nachbarn. Zum anderen wird der Überlapp der Wellenfunktionen durch die Vergrößerung der Gitterkonstante gegenüber dem Uransulfid reduziert.

Der Vergleich mit bereits publizierten Daten erlaubt eine Zuordnung der Strukturen in den optischen Spektren zu $5f - 6d$ - bzw. $6d - 5f$ -Interbandübergängen. Die optischen Messungen haben gezeigt, daß bereits beim $U_{0,55}La_{0,45}S$ die Stärke des $6d - 5f$ -Übergangs derart gering ist, daß eine eindeutige Zuordnung nicht möglich erscheint, während er bei $U_{0,8}La_{0,2}S$ noch deutlich erkennbar ist. Dies läßt aufgrund der Tatsache, daß die Gitterkonstante hier noch erheblich kleiner ist als z. B. im USe , den Schluß zu, daß die magnetische Verdünnung sich viel stärker auf den Lokalisierungsgrad auswirkt als die Ausdehnung der Einheitszelle durch die Beimengung von Lanthan.

Die magnetischen Messungen geben einen Hinweis auf ferromagnetische Ordnung für Urankonzentrationen bis hinunter zu 30 %. Das von anderen Gruppen gefundene vollständige bzw. weitgehende Verschwinden des magnetischen Moments konnte in unseren Messungen nicht bestätigt werden. Das magnetische Moment pro Uranatom nimmt unterhalb $x = 0,6$ allerdings erheblich ab, während die Curietemperatur nahezu linear mit x variiert. Auffällig ist das Auftreten einer extrem hohen magnetokristallinen Anisotropie in $[111]$ -Richtung bei hohen Urankonzentrationen, die sich dahingehend bemerkbar macht, daß selbst hohe Magnetfelder nicht ausreichen, um die magnetischen Momente in einer anderen Kristallrichtung zu zwingen. Diese ausgeprägte Anisotropie verschwindet bei geringeren Urankonzentrationen weitgehend.

Die ferromagnetischen $U_xLa_{1-x}S$ -Verbindungen zeigen einen außerordentlich großen magnetooptischen Kerr-Effekt. Hierbei spielen mehrere Faktoren eine Rolle: zum einen die hohe Spin-Bahn-Kopplung des Urans, die für eine erhebliche magnetooptische Aktivität beteiligter Interbandübergänge sorgt. Andererseits bewirken die freien Ladungsträger, daß im nahen ultravioletten Spektralbereich ein ausgeprägtes Minimum der Reflektivität auf-

tritt. Dieses erzeugt eine dominante Struktur im Kerr-Spektrum, die im Rahmen eines Modells der Aufspaltung der Plasmafrequenz beschrieben werden kann.

Ein anderer Schwerpunkt der Arbeit lag auf den Untersuchungen an dünnen Filmen der Übergangsmetallverbindungen XPt_3 ($X = \text{Mn}, \text{Cr}$). Besonderes Augenmerk wurde hierbei auf die Abhängigkeit der optischen und magnetooptischen Eigenschaften von der Filmdicke gelegt.

Die optischen Eigenschaften hängen eng mit der Film-Morphologie zusammen, wie durch den Vergleich der ellipsometrischen Spektren mit Oberflächencharakterisierungsmethoden wie Elektronenbeugung oder Rasterkraftmikroskopie gezeigt wurde. Beim Wachstum von CrPt_3 auf SrTiO_3 bilden sich zunächst kleine Inseln aus, die mit zunehmender Schichtdicke zu einem glatten Film zusammenwachsen. Bei noch größeren Dicken reißt der Film auf und bildet unregelmäßig geformte Inseln mit einem Durchmesser von $\approx 1 \mu\text{m}$. In den optischen Eigenschaften macht sich dies dahingehend bemerkbar, daß der glatte Film annähernd volumenartige Werte für ε_1 und ε_2 besitzt, während für dünne Schichten der Einfluß des Substrates durch ein Mehrschichtmodell berücksichtigt werden muß. Die inselartige Struktur des Films kann im Rahmen eines Effektiv-Medium-Ansatzes nach Bruggeman berücksichtigt werden. Dagegen führt die Ausbildung großer Inseln bei höheren Schichtdicken zu einer erheblichen Reduktion der Reflektivität wie auch der optischen Konstanten durch Streuverluste.

Die magnetooptischen Eigenschaften reagieren auf die Variation der Dicke in einer anderen Weise. Wird diese so groß, daß der Substrateinfluß vernachlässigt werden kann, findet keine nennenswerte Änderung des Kerr-Spektrums mehr statt. Bei geringeren Schichtdicken dagegen beeinflußt die Art der Überlagerung mehrfachreflektierter Teilstrahlen den Verlauf von Θ_K und η_K in entscheidender Weise: In „planparallelen“ Filmen mit mikroskopischer Rauigkeit findet eine kohärente Überlagerung statt. Diese führt zu einer deutlichen Veränderung der spektralen Lage der Strukturen. Im Rahmen eines magnetooptischen Vielschichtformalismus unter Annahme von „bulk“-Werten des Tensors der DK konnte die Änderung der Linienform des Spektrums für verschiedene Dicken in ausgezeichneter Weise modelliert werden.

Im Fall der keilförmigen Probe dagegen überlagern sich die Teilstrahlen in inkohärenter Weise. Aufgrund dessen findet hier zwar eine Reduktion der Kerr-Drehung, aber keine Änderung der Lage von Extrema und Nulldurchgängen im Spektrum statt.

Zusammenfassend läßt sich sagen, daß sich der mehr oder weniger lokalisierte Charakter der f -Elektronen im $\text{U}_x\text{La}_{1-x}\text{S}$ deutlich im optischen wie auch im magnetooptischen Spektrum niederschlägt. Wünschenswert für die Zukunft wären Bandstrukturechnungen, die zusammen mit dem Experiment einen genaueren Einblick in die elektronischen Eigenschaften dieses Materialsystems geben könnten.

Mittels magnetooptischer Untersuchungen an den Übergangsmetallverbindungen MnPt_3 und CrPt_3 konnte durch eine Anpassung der nichtdiagonalen optischen Leitfähigkeit durch analytische Linienformen indirekt die berechnete spinpolarisierte Zustandsdichte in der Nähe der Fermienergie verifiziert werden. Sehr interessante Ergebnisse erbrachte auch die Untersuchung der Schichtdickenabhängigkeit des Kerr-Effektes an CrPt_3 -Filmen mit

den dazugehörigen Modellrechnungen. Diese Resultate könnten zukünftig auf magnetische Multischichtsysteme erweitert werden, die an eine Optimierung der magnetooptischen Parameter in Hinblick auf mögliche Anwendungen denken lassen.

Anhang A: Das Senarmont-Prinzip

Mit Hilfe des Prinzips von Senarmont kann auf elegante Art und Weise die Messung der magnetooptischen Kerr-Elliptizität auf eine Drehwinkelmessung reduziert werden. Auf diese Weise ist die Elliptizitätsmessung auch mit dem in Kap. 3.2 dargestellten Verfahren möglich. Zu diesem Zweck wird das elliptisch polarisierte reflektierte Licht mit einem Phasenschieber in linear polarisiertes umgewandelt. In diesem Abschnitt soll die Funktionsweise des Senarmont-Prinzips im Rahmen einer Jones-Matrizen-Rechnung demonstriert werden [35].

Das Licht sei in x -Richtung polarisiert. Dann kann man diesen Polarisationszustand durch den Jones-Vektor

$$\vec{E}_E = E_0 \begin{pmatrix} 1 \\ 0 \end{pmatrix} \quad (8.1)$$

beschreiben. Der magnetooptische Kerr-Effekt bewirkt eine Änderung des Polarisationszustandes:

$$\vec{E}_{MO} \approx \begin{pmatrix} 1 & \Theta_K - i\eta_K \\ \Theta_K - i\eta_K & -1 \end{pmatrix} \cdot \vec{E}_E = \begin{pmatrix} 1 & \\ \Theta_K - i\eta_K & \end{pmatrix} E_0 \quad (8.2)$$

unter der Annahme kleiner Winkel ($\Theta_K, \eta_K \ll 1$). Die Komplexität des Vektors beschreibt eine elliptische Polarisation des Lichts. Diese wird nun aufgehoben durch einen geeignet eingestellten Phasenschieber. Dieser besitzt im allgemeinen folgende Jones-Matrix:

$$C = \begin{pmatrix} \cos^2 \Theta e^{i\Delta/2} + \sin^2 \Theta e^{-i\Delta/2} & 2i \sin \Theta \cos \Theta \sin \frac{\Delta}{2} \\ 2i \sin \Theta \cos \Theta \sin \frac{\Delta}{2} & \sin^2 \Theta e^{i\Delta/2} + \cos^2 \Theta e^{-i\Delta/2} \end{pmatrix}. \quad (8.3)$$

Θ ist der Winkel zwischen der optischen Achse und der Polarisationsachse des einfallenden Lichts, Δ ist die Phasenverschiebung. Bei einer Ausrichtung der optischen Achse des Phasenschiebers auf die große Hauptachse der Polarisationsellipse ($\Theta = \Theta_K$) und einer Phasenverschiebung von $\Delta = 90^\circ$ vereinfacht sich Gl. 8.3 zu:

$$C_{\Theta=\Theta_K, \Delta=90^\circ} \approx \frac{1}{\sqrt{2}} \begin{pmatrix} 1+i & 2i\Theta_K \\ 2i\Theta_K & 1-i \end{pmatrix}, \quad (8.4)$$

wobei Terme, die die Kerr-Drehung bzw. -Elliptizität in der 2. oder 3. Potenz enthalten, vernachlässigt sind. Somit läßt sich nun der Polarisationszustand nach Durchgang des Lichts durch den Phasenschieber angeben:

$$\vec{E}_{Senarmont} = \frac{1}{\sqrt{2}} \begin{pmatrix} 1+i & 2i\Theta_K \\ 2i\Theta_K & 1-i \end{pmatrix} \cdot \vec{E}_{MO} = \frac{1}{\sqrt{2}} \begin{pmatrix} 1+i & \\ (1+i)(\Theta_K - \eta_K) & \end{pmatrix}. \quad (8.5)$$

Durch Erweitern des Jones-Vektors mit $(1 - i)$ bekommt man:

$$\vec{E}_{\text{Senarmont}} = \begin{pmatrix} 1 \\ \Theta_K - \eta_K \end{pmatrix}. \quad (8.6)$$

Das Licht ist nunmehr wieder linear polarisiert. Bei bekannter Kerr-Rotation Θ_K ist also aus einer Drehwinkelmessung die Kerr-Elliptizität η_K nunmehr einfach auszurechnen. Zur Veranschaulichung des Prinzips von Senarmont siehe auch die unten stehende Skizze 8.1.

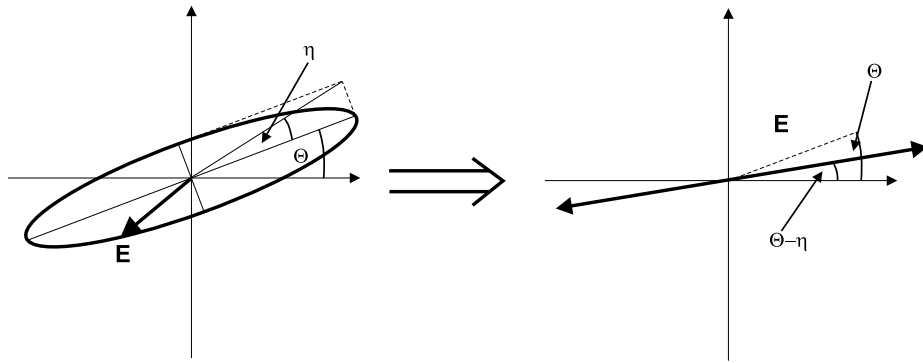


Abb. 8.1: Das Senarmont-Prinzip. Durch Einbau eines Phasenschiebers wird die Kerr-Elliptizität in eine zusätzliche Drehung überführt.

Anhang B: Bandstrukturechnungen und Interpretation des Kerr-Spektrums in TmS

Antonov et al. [98] haben im Rahmen von Bandstrukturechnungen das magnetooptische Kerr-Spektrum von TmS interpretiert. Da die dort erzielten Ergebnisse auch für die Deutung der Ergebnisse an den $\text{U}_x\text{La}_{1-x}\text{S}$ - Verbindungen interessant sind, sollen an dieser Stelle die mit den unterschiedlichen Modellen zur Behandlung der $4f$ -Elektronen berechneten Bandstrukturen sowie die Kerr-Spektren dargestellt werden.

Von den verschiedenen Modellen, die der Berechnung der elektronischen Struktur eines Festkörpers zugrunde liegen, hat sich unter anderem die lokale Spin-Dichte-Näherung (LSDA) als geeignet herausgestellt. Die lokale Spin-Dichte-Näherung führt das Vielteilchenproblem (Wechselwirkungen des Elektrons mit den $N - 1$ übrigen Elektronen des Kristalls) auf ein Einteilchenproblem zurück, indem statt der $N - 1$ Wellenfunktionen eine effektive Elektronendichte ρ angesetzt wird [128]. Zur Lösung dieses Einteilchenproblems muß die Austauschkorrelationsenergie bekannt sein. Ein Ansatz dazu wurde von Kohn und Sham [129] aus der Theorie des homogenen Elektronengases abgeleitet.

Diese Voraussetzung des homogenen Elektronengases liefert sogleich eine Begründung für die Grenzen der Anwendbarkeit von LSDA-Rechnungen. Während itinerante Systeme (wie etwa MnPt_3 oder CrPt_3) recht gut beschrieben werden können, kommen Schwächen dieses Verfahrens allerdings zum Tragen, wenn es sich bei dem untersuchten Material um ein korreliertes Elektronensystem handelt. Details zum Dichtefunktional- und LSDA-Formalismus, die sich auf die Berechnung der optischen Leitfähigkeit beziehen, sind u. a. in [109] und [110] nachzulesen.

Aus diesem Grund wurde die Bandstruktur von TmS und damit auch der Tensor der optischen Leitfähigkeit bzw. die magnetooptischen Spektren in der oben angegebenen Veröffentlichung mit Hilfe verschiedener Modelle berechnet. Abb. 8.2 und 8.3 zeigt die Ergebnisse dieser Rechnung.

Hierbei bringen sowohl die LSDA-Methode (itinerantes Modell für die $4f$ -Elektronen) als auch die Behandlung der $4f$ -Elektronen als Rumpfelektronen (vollständig lokalisiertes Modell, keine $4f$ -Zustandsdichte oberhalb -15 eV (s. Abb. 8.2 oben)) keine befriedigende Übereinstimmung mit dem experimentellen Kerr-Spektrum. Die Annahme der $4f$ -Zustände als Band nahe E_F würde zu einem breiten Extremum im σ_{2xy} führen. Folglich bekommt man im Bereich unterhalb 3 eV ein stark strukturiertes Spektrum der Kerr-Rotation und -Elliptizität (Abb. 8.3 links). Dagegen bewirkt die Vernachlässigung der $4f$ -Elektronen (bzw. ihre Anordnung im Atomrumpf) ein weitgehendes Verschwinden magnetooptisch aktiver Übergänge, was sich in geringen Werten von $\tilde{\sigma}_{xy}$ niederschlägt. Folglich erscheint nur eine kleine Struktur im Kerr-Spektrum in der Nähe des Plasmakanten-Reflexionsminimums (Abb. 8.3 Mitte).

Eine vernünftige Wiedergabe wird dagegen mit dem LSDA+U-Modell erreicht. Der Hubbard-Parameter U dient dabei zur Beschreibung der Coulomb-Wechselwirkung zwischen den f -Elektronen. U kann experimentell aus Photoemissionsmessungen bestimmt werden. In der Bandstrukturechnung kommt dies darin zum Ausdruck, daß sich die 12 vollbesetzten $4f$ -Zustände deutlich unterhalb (um den in der Rechnung verwendeten Wert $U = 6$ eV) des Fermi-niveaus befinden. Das 13. $4f$ -Niveau liegt direkt bei E_F und ist nur geringfügig besetzt, während das $4f$ -Loch knapp 1 eV oberhalb E_F liegt (siehe Abb. 8.2 unten). Dies ist in guter Übereinstimmung mit UPS-Experimenten, die eine Valenz des Thuliums von 2,91 angeben [130] (Elektronenkonfigurationen: Tm^{3+} : $[\text{Xe}] 4f^{12} 5d^1 6s^2$, Tm^{2+} : $[\text{Xe}] 4f^{13} 5d^0 6s^2$).

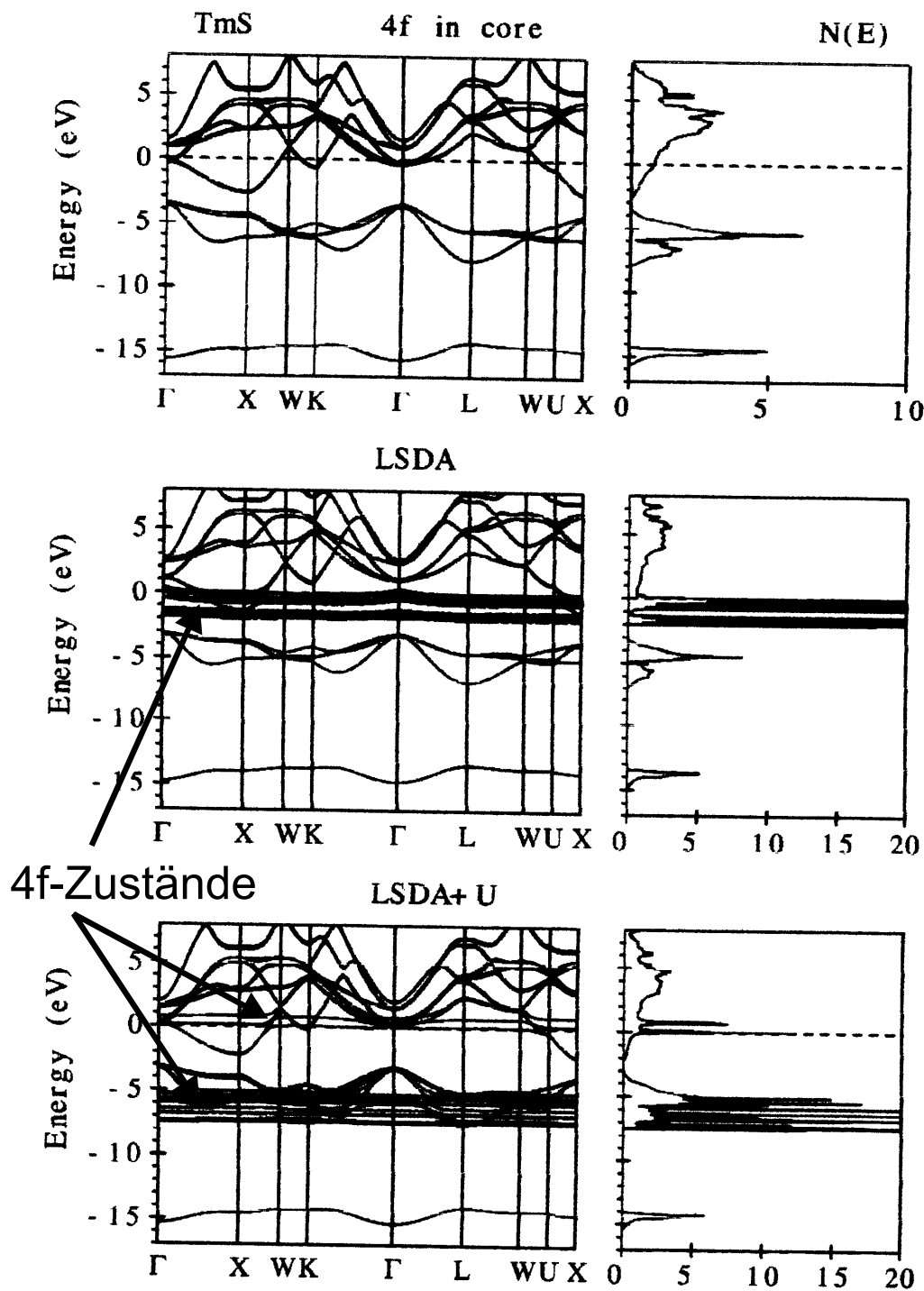


Abb. 8.2: Mit verschiedenen Verfahren berechnete Bandstruktur von TmS aus [98]. Die aus den Rechnungen hervorgehenden 4f-Niveaus sind zur Verdeutlichung hervorgehoben.

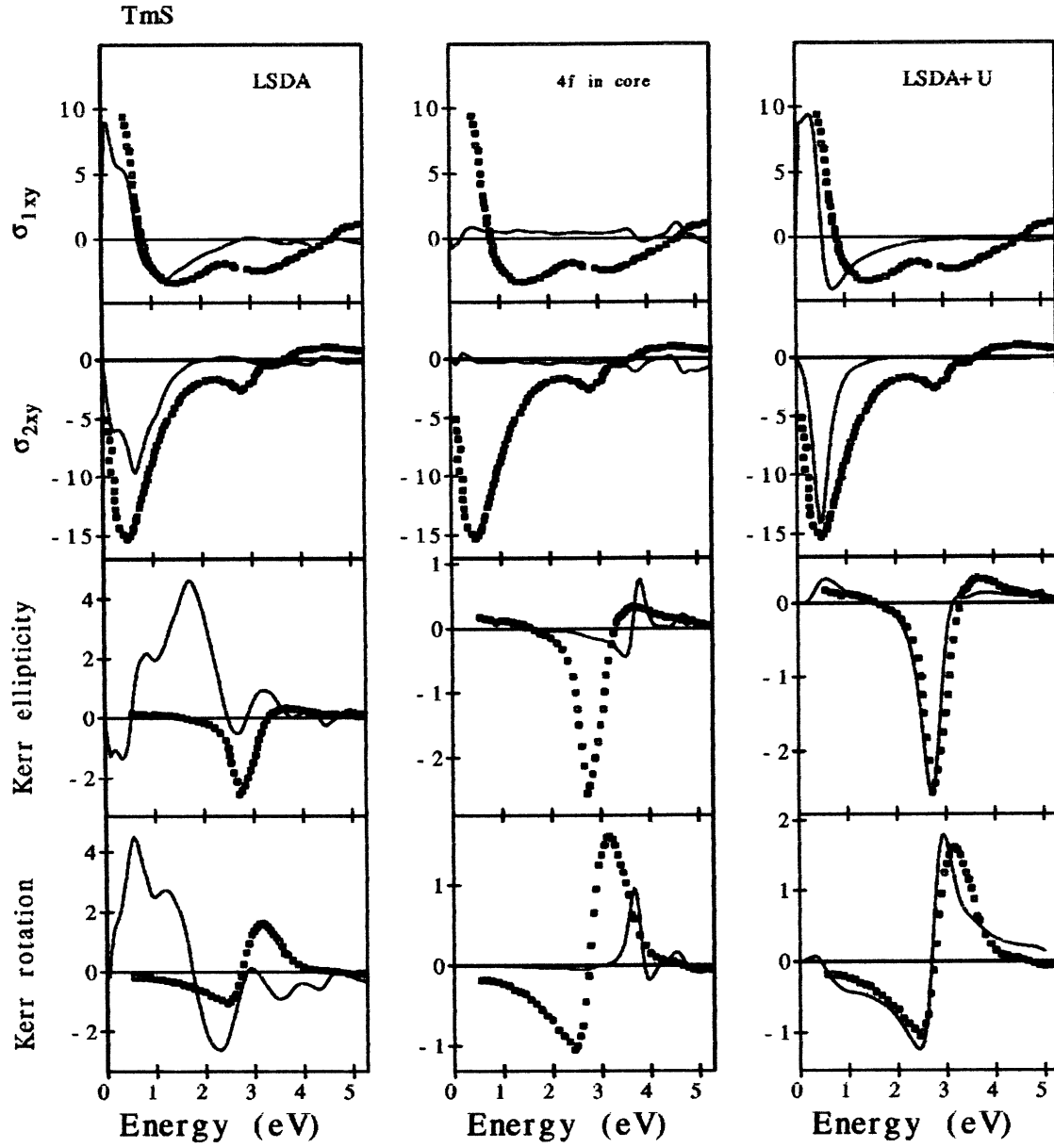


Abb. 8.3: Die aus den in Abb. 8.2 gezeigten Bandstrukturen hervorgehenden σ_{1xy} , σ_{2xy} , $-\eta_K$ und Θ_K -Spektren aus [98].

Literaturverzeichnis

- [1] M. Faraday, Ann. Phys., **12**, 572 (1846)
- [2] J. Kerr, Ann. Phys., **42**, 527 (1876)
- [3] H. A. Kramers, Atti Congr. Int. Fis. Como, **2**, 545 (1927)
- [4] F. Pedrotti, L. Pedrotti, W. Bausch, H. Schmidt, *Optik: Eine Einführung*, Prentice Hall, München (1996)
- [5] F. Abelès (Editor), *Optical Properties of Solids*, North Holland Publishing Company, Amsterdam (1972)
- [6] P. Drude, Ann. Phys. Chem. **36**, 532 (1889)
- [7] F. Abelès (Editor), *Optical Properties and Electronic Structure of Metals and Alloys*, North Holland Publishing Company, Amsterdam (1966)
- [8] J. Schoenes, *Magnetooptik*, Vorlesungsskript ETH Zürich (1985); P. Fumagalli, *Magneto-Optic Spectroscopy of Magnetic Thin Films: Influence of Structural Properties on Magnetic Ordering, Exchange and Coercivity*, Habilitationsschrift, RWTH Aachen (1997)
- [9] P. Zeeman, Phil. Mag. **43**, 226 (1897)
- [10] Homepage der Firma Schott, www.schott.com
- [11] W. Schütz, in *Handbuch der Experimentalphysik XVI*, Editor: W. Wien, F. Harms, Akad. Verlagsgesellschaft, Leipzig (1936)
- [12] J. Schoenes, J. Magn. Magn. Mater. **11**, 102 (1979)
- [13] J. Schoenes, P. Wachter, Physica B **86-88**, 125 (1977)
- [14] P. G. van Engen, K. H. J. Buschow, R. Jongebreur, M. Erman, Appl. Phys. Lett. **42**, 202 (1983)
- [15] T. Lückmann, Diplomarbeit IHO (1997), zum Phasendiagramm von CeSb siehe: J. Rossat-Mignod, J. M. Effantin, P. Burlet, T. Chattopadhyay, L. P. Regnault, H. Bartholin, C. Vettier, O. Vogt, D. Ravot, J. C. Achart, J. Magn. Magn. Mater. **52**, 111 (1985)

- [16] H. R. Hulme, Proc. Roy. Soc., **135**, 237 (1932)
- [17] C. Kittel, Phys. Rev. **83**, 208A (1951)
- [18] P. N. Argyres, Phys. Rev. **97**, 334 (1955)
- [19] W. Nolting, *Grundkurs Theoretische Physik, Band 5b: Quantenmechanik*, Verlag Zimmermann-Neufang Ulmen 67 (1992)
- [20] F. Salghetti-Drioli, *Magneto-Optical Kerr Effect in the Plasma Edge Region: Evidence for Interplay between Drude Term and Interband Transitions*, Dissertation, ETH Zürich (1999)
- [21] J. L. Erskine, E. A. Stern, Phys. Rev. B **8**, 1239 (1973)
- [22] E. A. Stern, Phys. Rev. Lett. **15**, 62 (1965)
- [23] D. Gignoux, in: *Materials Science and Technology*, Vol. **3A**, Editor: W. Cahn, P. Haasen, E. J. Kramer, VCH Verlagsgesellschaft Weinheim, 367 (1992)
- [24] E. Kneller, *Ferromagnetismus*, Springer-Verlag (1962), S. 401 ff.
- [25] M. Cardona, *Modulation Spectroscopy*, Acad. Press, New York (1969)
- [26] R. K. Willardson, A. C. Beer, in: *Semiconductors and semimetals*, Vol. **9**, *Modulation techniques*, Acad. Press, New York (1972)
- [27] R. Metzdorf, Wiss. Ber. HMFA, **8** (1983)
- [28] M. Vergöhl, *Magnetooptisches Dispersionsverhalten von Silizium-Germanium Mischkristallen*, Dissertation TU Braunschweig (1995)
- [29] L. Bergmann, C. Schaefer, *Lehrbuch der Experimentalphysik*, Bd. 3: *Optik*, W. de Gruyter-Verlag, 9. Auflage (1993)
- [30] R. M. A. Azzam, L. M. Bashara, *Ellipsometry and polarized light*, North Holland Publishing Company, Amsterdam (1986)
- [31] D. E. Aspnes, A. A. Studna, Appl. Optics **10**, 1024 (1971)
- [32] D. Hagedorn, Diplomarbeit IHO, TU Braunschweig (1998)
- [33] T. Legero, Diplomarbeit IHO, TU Braunschweig (1998)
- [34] A. Grobe, Staatsexamensarbeit IHO, TU Braunschweig (1999)
- [35] P. S. Theocaris, E. E. Gdoutos, *Matrix Theory of Photoelasticity*, Springer-Verlag, Berlin (1979)
- [36] K. Litfin, Diplomarbeit IHO, TU Braunschweig (1996)
- [37] D. E. Aspnes, J. Opt. Soc. Am. **64**, 812 (1974)

-
- [38] J. M. M. de Nijs, A. H. M. Holtslag, A. Hoekstra, A. van Silfhout, J. Opt. Soc. Am. **A5**, 1466 (1988)
- [39] D. D. Berkner, Phys. Lett. A **54**, 396 (1975)
- [40] P. Fischer, W. Hälg, W. von Wartburg, P. Schwob, O. Vogt, Phys. Kondens. Mater. **9**, 249 (1969)
- [41] R. Griessen, M. Landolt, H. R. Ott, Solid State Commun. **9**, 2219 (1971)
- [42] J. Ferré, J. Phys. **35**, 781 (1974)
- [43] J. Schoenes, Z. Phys. B **20**, 345 (1975)
- [44] Information des Verteidigungsministeriums der Schweiz, WWW-Adresse: www.vbs.admin.ch/ls/d/h_info/du/depleted_uranium
- [45] J. C. Spirlet, O. Vogt, in *Handbook of the Physics and Chemistry of the Actinides*, Editor: A. J. Freeman und G. H. Lander, North Holland Publishing Company, Amsterdam, Vol. **1**, 79 (1984)
- [46] G. H. Lander, M. S. S. Brooks, B. Lebech, P. J. Brown, O. Vogt, K. Mattenberger, J. Appl. Phys. **69**, 4803 (1991)
- [47] D. Menzel, *Magnetische Eigenschaften von dünnen MnBi-, Mn_xPt_{1-x} - und Cr_xPt_{1-x} -Filmen für die magnetooptische Datenspeicherung*, Dissertation TU Braunschweig (2000)
- [48] F. A. Wedgwood, J. Phys. C **5**, 2427 (1972)
- [49] O. Vogt, Physica B **102**, 206 (1980)
- [50] G. Busch, O. Vogt, A. Delapalme, G. H. Lander, J. Phys. C **12**, 1391 (1979)
- [51] O. Vogt, K. Mattenberger, J. Löhle, J. Magn. Magn. Mater. **231**, 199 (2001)
- [52] B. Reihl, N. Mårtensson, D. E. Eastman, A. J. Arko, O. Vogt, Phys. Rev. B **26**, 1842 (1982)
- [53] L. Severin, M. S. S. Brooks, B. Johansson, J. Kübler, J. Magn. Magn. Mater. **140-144**, 1423 (1995)
- [54] M. S. S. Brooks, T. Gasche, B. Johansson, J. Phys. Chem. Solids **56**, 1491 (1995)
- [55] A. J. Freeman, R. E. Watson, Phys. Rev. **127**, 2058 (1962), und: Q. G. Sheng, B. R. Cooper, S. P. Lim, J. Appl. Phys. **73**, 5409 (1993)
- [56] J. Schoenes, O. Vogt, F. Hulliger, J. Magn. Magn. Mater. **140-144**, 1425 (1995)
- [57] A. Bombardi, *Localisation électronique et magnétisme dans les monochalcogénures et les monopnictures de l'uranium et du neptunium, étude des systèmes: $U_xLa_{1-x}(S,Se)$, $U_{0.2}(La_{0.15}Y_{0.85})_{0.8}Te$ et $NpAs_{1-x}Se_x$* , Dissertation, Universität Grenoble (2001)

- [58] F. Bourdarot, A. Bombardi, P. Burlet, R. Calemczuk, G. H. Lander, F. Lapierre, J. P. Sanchez, K. Mattenberger, O. Vogt, Eur. Phys. Journal B **9**, 605 (1999)
- [59] J. Schoenes, O. Vogt, J. Löhle, F. Hulliger, K. Mattenberger, Phys. Rev. B **53**, 14987 (1996)
- [60] C. Stellmach, Diplomarbeit IHO, TU Braunschweig (2001)
- [61] K. Syassen, W. B. Holzapfel, Europhys. Conf. Abstr. A **1**, 756 (1975)
- [62] M. S. S. Brooks, persönliche Mitteilung
- [63] K. Litfin, persönliche Mitteilung
- [64] A. Borgschulte, *Elektronenbeugungs- und Photoemissionsstudien an magnetischen und optischen Funktionsschichten*, Dissertation, TU Braunschweig (2002)
- [65] T. B. Massalski, *Binary Alloy Phase Diagrams*, 2. Ed., ASM International (1990)
- [66] K.-U. Harder, *Molekularstrahlepitaxie und Charakterisierung von polykristallinen und epitaktischen MnBi-Filmen*, Dissertation, TU Braunschweig (1999)
- [67] A. Borgschulte, D. Menzel, T. Widmer, H. Bremers, U. Barkow, J. Schoenes, J. Magn. Magn. Mater. **205**, 151 (1999)
- [68] B. Antonini, F. Lucari, F. Menzinger, A. Paoletti, Phys. Rev. **187**, 611 (1969)
- [69] M. J. Besnus, A. J. P. Meyer, Phys. Stat. Sol. (b) **58**, 533 (1973)
- [70] M. Maret, M. Albrecht, J. Köhler, R. Poinot, C. Ulhaq-Bouillet, J. M. Tonnerre, J. F. Berar, E. Bucher, J. Magn. Magn. Mater. **218**, 151 (2000)
- [71] W. J. L. Buyers, T. M. Holden, in: *Handbook on the Physics and Chemistry of the Actinides*, Editor: A. J. Freeman und G. H. Lander, North Holland Publishing Company, Amsterdam, Vol. 2, 239 (1984)
- [72] V. E. Adamyan, N. P. Bodrova, E. V. Goncharova, G. M. Loginov, Sov. Phys. Sol. State **12**, 2239 (1971)
- [73] E. Bucher, K. Andres, F. J. di Salvo, J. P. Maita, A. C. Gossard, A. S. Cooper, G. W. Hull jr., Phys. Rev. B **11**, 500 (1975)
- [74] D. L. Tillwick, P. de V. du Plessis, J. Magn. Magn. Mater. **3**, 319 und 329 (1976)
- [75] G. Grosse, G. M. Kalvius, A. Kratzer, E. Schreier, F. J. Burghart, K. Mattenberger, O. Vogt, J. Magn. Magn. Mater. **205**, 79 (1999)
- [76] G. Busch, O. Vogt, J. Less Common Metals **62**, 335 (1978)
- [77] W. Reim, J. Magn. Magn. Mater. **58**, 1 (1986)
- [78] F. Preisach, Ann. Phys. **3**, 727 (1929)

-
- [79] R. Forrer, J. Phys. Radium **7**, 109 (1926)
- [80] R. M. Bozorth, J. F. Dillinger, Nature **127**, 777 (1931)
- [81] B. R. Cooper, Y.-L. Lin, J. Appl. Phys. **83**, 6432 (1998)
- [82] W. Reim, J. Schoenes, O. Vogt, Solid State Commun. **47**, 597 (1983)
- [83] T. Kraft, P. M. Oppeneer, V. N. Antonov, H. Eschrig, Phys. Rev. B **52**, 3561 (1995)
- [84] J. Schoenes, Phys. Rep. **66**, 187 (1980)
- [85] J. Schoenes, O. Vogt, J. Keller, Sol. St. Commun. **32**, 873 (1979)
- [86] P. M. Oppeneer, V. N. Antonov, A. Y. Perlov, A. N. Yaresko, T. Kraft, H. Eschrig, Physica B **230-232**, 544 (1997)
- [87] V. I. Anisimov, J. Zaanen, O. K. Andersen, Phys. Rev. B **44**, 943 (1991)
- [88] W. Reim, J. Schoenes, F. Hulliger, O. Vogt, J. Magn. Magn. Mater. **54 - 57**, 1401 (1986)
- [89] R. Pittini, J. Schoenes, F. Hulliger, P. Wachter, Phys. Rev. Lett. **78**, 725 (1997)
- [90] F. Salghetti-Drioli, P. Wachter, L. Degiorgi, Solid State Commun. **109**, 773 (1999)
- [91] V. P. Zhuze, M. G. Karin, D. P. Lukirskii, V. M. Sergeeva, A. I. Shelykh, Sov. Phys. Sol. St. **22**, 1558 (1980)
- [92] W. Beckenbaugh, J. Evers, G. Güntherodt, E. Kaldis, P. Wachter, J. Phys. Chem. Solids **36**, 239 (1975)
- [93] W. Reim, J. Schoenes, *Magneto-optical spectroscopy of f-electron systems*, in: *Ferromagnetic materials*, Editor: K. H. J. Buschow, E. P. Wohlfarth, Elsevier Science Publishers, Vol. **5**, 133 ff. (1990)
- [94] J. W. Allen, J. C. Mikkelsen, Phys. Rev. B **15**, 2952 (1977)
- [95] H. Brändle, J. Schoenes, F. Hulliger, Helv. Phys. Acta **62**, 199 (1989)
- [96] H. Brändle, Dissertation, ETH Zürich (1990)
- [97] W. Reim, O. E. Hüsler, J. Schoenes, E. Kaldis, P. Wachter, K. Seiler, J. Appl. Phys. **55**, 2155 (1984)
- [98] V. N. Antonov, B. N. Harmon, A. N. Yaresko, Phys. Rev. B **63**, 205112 (2001)
- [99] J. Schoenes, in :*Handbook on the Physics and Chemistry of the Actinides*, Editor: A. J. Freeman und G. H. Lander, North Holland Publishing Company, Amsterdam, Vol. **2**, 341 (1984)
- [100] F. Herman, S. Skillman, *Atomic Structure Calculations*, Prentice-Hall (1963)

- [101] B. Reihl, N. Mårtensson, O. Vogt, J. Appl. Phys. **53**, 2008 (1982)
- [102] K. H. J. Buschow, P. G. van Engen, R. Jongebreur, J. Magn. Magn. Mater **38**, 1 (1983)
- [103] J. Schoenes, in: *Materials Science and Technology*, Editor: W. Cahn, P. Haasen, E. J. Kramer, VCH Verlagsgesellschaft Weinheim, Vol. **3A**, 147 (1992)
- [104] T. Kato, H. Kikuzawa, S. Iwata, S. Tsunashima, S. Uchiyama, J. Magn. Magn. Mater. **140-144**, 713 (1995)
- [105] M. Vergöhl, J. Schoenes, J. Magn. Soc. Jpn. **20**, 141 (1996)
- [106] K. W. Wierman, J. N. Hilfiker, R. F. Sabiryanov, S. S. Jaswal, R. D. Kirby, J. A. Woollam, Phys. Rev. B **55**, 3093 (1997)
- [107] J. Cho, M. Park, H.-S. Kim, T. Kato, S. Iwata, S. Tsunashima, J. Appl. Phys. **86**, 3149 (1999)
- [108] K. Sugihara, H. Ito, T. Kato, S. Iwata, S. Tsunashima, J. Magn. Soc. Jpn. **25**, 234 (2001)
- [109] P. M. Oppeneer, *Theory of the Magneto-optical Kerr Effect in Ferromagnetic Compounds*, Habilitationsschrift, TU Dresden (1999)
- [110] J. Köhler, *Polarer, magneto-optischer Kerr-Effekt in kollinear und nicht-kollinear magnetischen, metallischen Verbindungen*, Dissertation, TU Darmstadt (1997)
- [111] P. M. Oppeneer, V. N. Antonov, T. Kraft, H. Eschrig, A. N. Yaresko, A. Y. Perlov, J. Phys. Cond. Matter **8**, 5769 (1996)
- [112] A. Hasegawa, J. Phys. Soc. Jpn. **54**, 1477 (1985)
- [113] R. J. Lange, S. J. Lee, D. W. Lynch, P. C. Canfield, B. N. Harmon, S. Zollner, Phys. Rev. B **58**, 351 (1998)
- [114] A. Borgschulte, F. J. Niebur, D. Menzel, J. Schoenes, Phys. Rev. B **62**, 7824 (2000)
- [115] D. Fuchs, *Spektroskopische Ellipsometrie im Vakuum-Ultraviolett-Spektralbereich*, Dissertation, TU Berlin (1990)
- [116] L. van Hove, Phys. Rev. **89**, 1189 (1953)
- [117] K. Iwashita, T. Oguchi, T. Jo, Phys. Rev. B **54**, 1159 (1996)
- [118] R. Nies, F. R. Keßler, Phys. Stat. Sol. (a) **111**, 639 (1989)
- [119] R. Carey, D. M. Newman, J. P. Snelling, B. W. J. Thomas, Thin Solid Films **259**, 75 (1995)

-
- [120] F. R. Keßler, *Magnetooptische Effekte bei inkohärenter Vielfachreflexion - Teil II: Matrizenverfahren*, Abhandlungen der Braunschweigischen Wissenschaftlichen Gesellschaft **44**, Erich Goltze Verlag, Göttingen, 37 (1994)
- [121] S. Hashimoto, Y. Ochiai, K. Aso, J. Appl. Phys. **67**, 4429 (1990)
- [122] M. Maret, M. C. Cadeville, R. Poinso, A. Herr, E. Baurepaire, C. Monier, J. Magn. Magn. Mater. **166**, 45 (1997)
- [123] A. Borgschulte, D. Zur, D. Menzel, J. Schoenes, P. M. Oppeneer, Phys. Rev. B, **66**, 144421 (2002)
- [124] W. Theiss, *The Use of Effective Medium Theories in Optical Spectroscopy*, in: *Festkörperprobleme*, **33**, 149, Vieweg Verlag (1993)
- [125] D. A. G. Bruggeman, Ann. Physik **5**, 636 (1935)
- [126] J. C. Maxwell Garnett, Phil. Trans. **203**, 385 (1904)
- [127] O. S. Heavens, *Optics of thin films*, Dover Publications, New York (1955)
- [128] P. Hohenberg, W. Kohn, Phys. Rev. **136**, B864 (1964)
- [129] W. Kohn, L. Sham, Phys. Rev. **140**, A1133 (1965)
- [130] Y. Ufuktepe, S. Kimura, T. Kinoshita, K. G. Nath, H. Kumigashira, T. Takahashi, T. Matsumura, T. Suzuki, H. Ogasawara, A. Kotani, J. Phys. Soc. Jpn. **67**, 2018 (1998)

Liste wissenschaftlicher Veröffentlichungen

Publikationen in referierten Zeitschriften

1. M. Broschwitz, K. Dettmer, J. Schoenes, *Independent determination of Ge content in thin $Si_{1-x}Ge_x$ quantum wells by spectroscopic ellipsometry*, Appl. Phys. Lett. **77**, 367 (2000)
2. J. Schoenes, U. Barkow, M. Broschwitz, P. Oppeneer, D. Kaczorowski, A. Czopnik, *Optical properties of itinerant UGa_3 : Ellipsometric measurements and first-principles theory*, Phys. Rev. B **61**, 7415 (2000)
3. D. Menzel, A. Borgschulte, M. Broschwitz, A.-M. Carsteanu, J. Schoenes, *Magnetism and magneto-optics of MnBi nano-particles*, J. Magn. Soc. Jpn. **25**, 263 (2001)
4. M. Broschwitz, M. Marutzky, J. Schoenes, O. Vogt, K. Mattenberger, *Magnetic and magneto-optical properties of $U_{0.55}La_{0.45}S$* , Phys. Rev. B **66**, 054425 (2002)
5. M. Broschwitz, S. Knetsch, A. Borgschulte, L. Bizdoaca, J. Schoenes, *Thickness dependence of the optical and magneto-optical properties of thin $CrPt_3$ films*, J. Appl. Phys. **93**, 2458 (2003)

Tagungs- und Konferenzbeiträge

1. M. Broschwitz, K. Litfin, M. Vergöhl, K. Dettmer, J. Schoenes, *Ellipsometrische Untersuchungen an Si/Ge-MQWs*, Verh. DPG (VI) **32**, 728 (1997)
2. M. Broschwitz, U. Barkow, J. Lammers, R. Schulz, J. Schoenes, T. Wethkamp, K. Wilmers, N. Esser, B. Becker, A. Menovsky, N. Patil, *Anisotropic optical constants between 1,1 and 9,5 eV of the heavy fermion system URu_2Si_2* , BESSY-Jahresbericht 1997, 211 (1997)
3. M. Broschwitz, K. Dettmer, J. Schoenes, *Ellipsometrische Untersuchungen der Interbandübergänge in Si/Ge-MQWs*, Verh. DPG (VI) **33**, 707 (1998)

4. D. Hagedorn, M. Broschwitz, R. Schulz, U. Barkow, J. Schoenes, *Optische und magnetooptische Eigenschaften von UGa_3* , Verh. DPG (VI) **33**, 801 (1998)
5. J. Lammers, M. Broschwitz, U. Barkow, R. Schulz, J. Schoenes, P. Monachesi, M. S. S. Brooks, T. Wethkamp, K. Wilmers, N. Esser, B. Becker, A. Menovsky, N. Patil, F. Hulliger, *Die elektronischen Eigenschaften von URu_2Si_2 zwischen 10 meV und 9,5 eV*, Verh. DPG (VI) **33**, 843 (1998)
6. J. Schoenes, U. Barkow, M. Broschwitz, J. Lammers, K. Litfin, R. Schulz, D. Kaczorowski, B. Becker, A. Menovsky, N. Patil, *Ellipsometry with synchrotron radiation on UGa_3 and URu_2Si_2* , Digest 28. Journées des Actinides, Uppsala (Schweden) (1998)
7. M. Broschwitz, A. Borgschulte, U. Barkow, J. Schoenes, C. Cobet, N. Esser, *Optische und magnetooptische Eigenschaften von epitaktisch hergestellten $MnPt_3$ -Filmen*, Verh. DPG (VI) **34**, 814 (1999)
8. M. Broschwitz, A. Borgschulte, D. Menzel, U. Barkow, J. Schoenes, C. Cobet, N. Esser, W. Richter, *Optical and magneto-optical properties of $MnBi$* , BESSY-Jahresbericht, Berlin (1999)
9. A. Borgschulte, D. Menzel, M. Broschwitz, M. Rode, U. Barkow, J. Schoenes, *ARUPS study of Mn-Bi surface alloys*, BESSY-Jahresbericht, Berlin (1999)
10. M. Broschwitz, U. Barkow, A. Borgschulte, A. Jacob, J. Schoenes, *Determination of the optical constants of YH_x ($x = 2, 3$) by spectroscopic ellipsometry*, Verh. DPG (VI) **35**, 447 (2000)
11. A.-M. Carsteanu, M. Broschwitz, A. Borgschulte, D. Menzel, J. Schoenes, *Magneto-optical investigations on epitaxial Cr_xPt_{1-x} films*, Verh. DPG (VI) **35**, 609 (2000)
12. A. Borgschulte, D. Menzel, M. Broschwitz, M. Rode, U. Barkow, J. Schoenes, *ARUPS study of Mn-Bi surface alloys*, Verh. DPG (VI) **35**, 630 (2000)
13. D. Menzel, A. Borgschulte, M. Broschwitz, F.-J. Niebur, J. Schoenes, *Large Kerr rotation in the blue spectral range of epitaxial Mn_xPt_{1-x} and Cr_xPt_{1-x} thin films on $SrTiO_3$ substrates*, 18th General Conference of the Condensed Matter Division of the European Physical Society, Montreux (Schweiz) (2000)
14. D. Menzel, A. Borgschulte, M. Broschwitz, F.-J. Niebur, K. Dettmer, J. Schoenes, *Out-of-plane-Magnetisierung von epitaktischen $CrPt_3$ -Filmen*, Verh. DPG (VI) **35**, 609 (2000)
15. D. Menzel, A. Borgschulte, M. Broschwitz, A.-M. Carsteanu, J. Schoenes, *Magnetism and magneto-optics of $MnBi$ nano-particles*, Digest of the Magneto-optical Recording International Symposium (MORIS) & Asia Pacific Data Storage Conference (APDSC),

Nagoya (Japan), 124 (2000)

16. M. Broschwitz, B. Lücke, A.-M. Carsteanu, A. Borgschulte, D. Menzel, J. Schoenes, *Magnetooptische Untersuchungen an epitaktischen CrPt₃-Filmen*, Verh. DPG (VI) **36**, 255 (2001)

17. D. Menzel, A. Borgschulte, M. Broschwitz, A.-M. Carsteanu, J. Schoenes, *Magnetismus und Magnetooptik an MnBi-Nanopartikeln*, Verh. DPG (VI) **36**, 269 (2001)

18. M. Broschwitz, J. Schoenes, O. Vogt, K. Mattenberger, *Magneto-optical properties of U_{0.3}La_{0.7}S*, 31. Journées des Actinides, St. Malo (Frankreich) (2001)

19. M. Broschwitz, J. Schoenes, O. Vogt, K. Mattenberger, *Magnetooptische Untersuchungen an U_xLa_{1-x}S-Einkristallen*, Wiss. Ber. HMFA **16** (1999/2000)

20. M. Broschwitz, J. Schoenes, M. Marutzky, O. Vogt, K. Mattenberger, *Magnetooptische Eigenschaften an U_{1-x}La_xS*, Verh. DPG (VI) **37**, 225 (2002)

21. M. Broschwitz, S. Knetsch, A. Borgschulte, L. Bizdoaca, J. Schoenes, *Schichtdickenabhängigkeit der optischen und magnetooptischen Eigenschaften von epitaktischen CrPt₃-Filmen*, Verh. DPG (VI) **37**, 94 (2002)

22. C. Stellmach, M. Rode, M. Broschwitz, U. Barkow, J. Schoenes, *Optische Untersuchungen am U_xLa_{1-x}S-System von 10 meV bis 4 eV*, Verh. DPG (VI) **37**, 286 (2002)

23. M. Broschwitz, A.-M. Carsteanu, A. Borgschulte, J. Schoenes, *Optik und Magnetooptik an dünnen CrPt₃-Filmen*, Verh. DPG (VI) **38**, 126 (2003)

24. M. Marutzky, M. Broschwitz, D. Menzel, J. Schoenes, *Magnetooptische Messungen an Fe_{1-x}Co_xSi-Einkristallen*, Verh. DPG (VI) **38**, 313 (2003)

25. H. Schröter, A. Borgschulte, M. Broschwitz, U. Barkow, J. Schoenes, *Optische Eigenschaften von Yttrium und Yttriumhydriden zwischen 1 und 10 eV*, Verh. DPG (VI) **38**, 367 (2003)

Lebenslauf

Name: Martin Broschwitz
Anschrift: Wabestraße 34
38106 Braunschweig
Geburtsdatum: 10. 5. 1972
Geburtsort: Hoya/Weser
Familienstand: ledig
Staatsangehörigkeit: deutsch

1978 - 1982	Besuch der Grundschule Eystrup
1982 - 1984	Besuch der Orientierungsstufe Hoya
1984 - 1988	Besuch des Gymnasiums Hoya
1988 - 1991	Besuch des Domgymnasiums Verden/Aller
Mai 1991	Erwerb der allgemeinen Hochschulreife
1991 - 1992	Wehrdienst in Wolfenbüttel und Liebenau
1992 - 1998	Studium der Physik an der TU Braunschweig
Oktober 1994	Vordiplom
1996 - 1998	Anfertigung der Diplomarbeit am Institut für Halbleiterphysik und Optik
August 1998	Abschluß des Studiums als Diplom-Physiker
seit September 1998	Tätigkeit als wissenschaftlicher Mitarbeiter im Institut für Halbleiterphysik und Optik

Danksagung

Diese Arbeit entstand während meiner Tätigkeit im Institut für Halbleiterphysik und Optik an der TU Braunschweig. Allen Institutsmitgliedern danke ich für die angenehme Arbeitsatmosphäre sowie die stetige Hilfsbereitschaft. Insbesondere seien an dieser Stelle erwähnt:

Prof. Dr. Joachim Schoenes danke ich für die Aufnahme in seine Arbeitsgruppe und die interessante Themenstellung. Seine große Erfahrung auf dem Gebiet der (Magneto-)Optik und der Physik der Aktiniden haben dieser Arbeit immer wieder neue Impulse gegeben. Prof. Dr. Jürgen Hesse danke ich für die Übernahme des Koreferats.

Herzlich bedanken möchte ich mich bei Dr. Andreas Borgschulte für die Herstellung zahlreicher MBE-Proben sowie zahlreiche Diskussionen über deren „Innenleben“. Ihm und Martin Rode sei auch für ihre moralische Unterstützung während der gemeinsamen Promotionszeit gedankt.

Alexander Grobe, Ana-Maria Carsteanu, Bastian Lücke und Sascha Knetsch haben im Rahmen ihrer Diplom- und Staatsexamensarbeiten einen wesentlichen Beitrag zur Magnetooptik an den Übergangsmetallverbindungen geleistet und sich von den „Macken“ des Meßplatzes nicht aus der Ruhe bringen lassen. Die Magnetisierungsmessungen an den $U_xLa_{1-x}S$ -Proben wurden von Michael Marutzky und Dr. Dirk Menzel angefertigt. Christian Stellmach zeitigte für die infrarotoptischen Messungen verantwortlich. Last, but not least unterstützte mich Dr. Ulrich Barkow stets mit Rat und Tat. Ihnen allen spreche ich meinen Dank aus.

Zahlreiche technische Probleme insbesondere in der Aufbauphase konnten mit Hilfe des Werkstatt-Teams sowie der Probenpräparation um Thilo Lampe gelöst werden. Robert Hofmann, Horst Simontowski und Arno Ellermann sorgten für den reibungslosen Betrieb der HMFA. Allen Genannten einen herzlichen Dank!

Ferner sei dem Institut für Technische Physik, insbesondere Frank Werner, für die Versorgung mit flüssigem Helium sowie Dr. Oscar Vogt und Kurt Mattenberger von der ETH Zürich für die Bereitstellung der $U_xLa_{1-x}S$ -Proben gedankt.

Der Hochmagnetfeldanlage der TU Braunschweig und dem BESSY danke ich für die Bereitstellung von Meßzeit und finanzielle Unterstützung.